

Docket No.: K-0597

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of

Jeong Dae SEO, Kyung Hoon LEE, Hee Jung KIM,  
Chun Gun PARK and Hyoung Yun OH

Serial No.: 10/743,778

: Group Art Unit: Unassigned

Confirm. No.: Unassigned

: Examiner: Unassigned

Filed: December 24, 2003

: Customer No.: 34610

For: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

**TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT(S)**

U.S. Patent and Trademark Office  
2011 South Clark Place  
Customer Window  
Crystal Plaza Two, Lobby, Room 1B03  
Arlington, Virginia 22202

Sir:

At the time the above application was filed, priority was claimed based on the following application(s):

Korean Application No(s). 2002-83279 filed on December 24, 2002

and 2003-20465 filed on April 1, 2003.

A copy of each priority application listed above is enclosed.

Respectfully submitted,  
FLESHNER & KIM, LLP



Carl R. Wesolowski  
Registration No. 40,372

P.O. Box 221200  
Chantilly, Virginia 20153-1200  
703 502-9440 DYK/CRW:cre

Date: January 16, 2004

**Please direct all correspondence to Customer Number 34610**



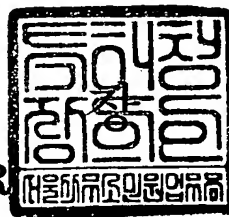
별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

출원번호 : 10-2003-0020465  
Application Number  
출원년월일 : 2003년 04월 01일  
Date of Application APR 01, 2003  
출원인 : 엘지전자 주식회사  
Applicant(s) LG Electronics Inc.

2003 12 20  
년 월 일

특 허 청  
COMMISSIONER





919980000221



10111010000000000000



0000548000

방식 심사관	당	당	심사관

【서류명】 특허출원서

【권리구분】 특허

【수신처】 특허청장

【창조번호】 0006

【제출일자】 2003.04.01

【국제특허분류】 C09F

【발명의 극문명칭】 유기 전계 발광 소자

【발명의 영문명칭】 organic electroluminescence device

【출원인】

【명칭】 엘지전자 주식회사

【출원인코드】 1-2002-012840-3

【대리인】

【성명】 김용인

【대리인코드】 9-1998-000022-1

【포괄위임등록번호】 2002-027000-4

【대리인】

【성명】 심창섭

【대리인코드】 9-1998-000279-9

【포괄위임등록번호】 2002-027001-1

【발명자】

【성명의 극문표기】 오형운

【성명의 영문표기】 OH.Hyoung Yun

【주민등록번호】 690828-1030917

【우편번호】 156-091

【주소】 서울특별시 동작구 사당1동 1016-24

【국적】 KR

【발명자】

【성명의 국문표기】 서정대

【성명의 영문표기】 SEO, Jeong Dae

【주민등록번호】 721009-1768121

【우편번호】 427-070

【주소】 경기도 과천시 주암동 66-8 301호

【국적】 KR

【발명자】

【성명의 국문표기】 이경훈

【성명의 영문표기】 LEE, Kyung Hoon

【주민등록번호】 740113-1673711

【우편번호】 151-080

【주소】 서울특별시 관악구 남현동 602-165 308호

【국적】 KR

【발명자】

【성명의 국문표기】 김희정

【성명의 영문표기】 KIM, Hee Jung

【주민등록번호】 710222-2821812

【우편번호】 137-130

【주소】 서울특별시 서초구 양재동 16-37 2층 203호

【국적】 KR

【발명자】

【성명의 국문표기】 박춘건

【성명의 영문표기】 PARK, Chun Gun

【주민등록번호】 770208-1177412

【우편번호】 151-022

【주소】 서울특별시 관악구 신림12동 587-30호 101호

【국적】 KR

【우선권주장】

【출원국명】 KR

【출원종류】 특허

【출원번호】 10-2002-0083279

【출원일자】 2002. 12. 24

【증명서류】 첨부

【심사청구】 청구

【취지】 특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다.

대리인

김응인 (인)

대리인

심창설 (인)

【수수료】

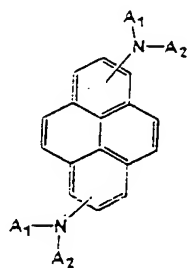
【기본출원료】	20	면	29,000	원
【가산출원료】	32	면	32,000	원
【우선권주장료】	1	건	26,000	원
【심사청구료】	11	항	461,000	원
【합계】			548,000	원

【첨부서류】 1.요약서· 명세서(도면)\_1통

[요약서]

[요약]

본 발명은 색순도가 우수한 청색 발광 물질을 사용하는 유기 전계 발광 소자에 관한 것으로, 전자 주입 전극(음극)과 정공 주입 전극(양극) 사이에 발광층을 포함하고, 이 발광층이 청색 발광물질인 하기 화학식 1을 포함하는 유기 전계 발광 소자를 제공한다.



[색인어]

청색 발광 물질, 유기 전계 발광 소자, 색순도

## 【명세서】

### 【발명의 명칭】

유기 전계 발광 소자{organic electroluminescence device}

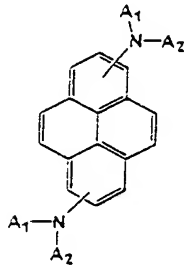
### 【발명의 상세한 설명】

### 【발명의 목적】

### 【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】

본 발명은 유기 전계 발광 소자에 관한 것으로서, 특히 유기발광층의 청색 발광 물질로서 하기 화학식 1의 구조를 갖는 화합들을 포함하는 유기 전계 발광 소자에 관한 것이다.

### 【화학식 1】



최근 표시장치의 대형화에 따라 공간 점유가 적은 평면표시소자의 요구가 증대되고 있는데, 이러한 평면표시소자 중 하나로서 유기발광다이오드(organic light emitting diode: OLED)라고도 불리는 유기 전계 발광 소자의 기술이 빠른 속도로 발전하고 있으며, 이미 여러 시제품들이 발표된 바 있다.

유기 전계 발광 소자는 전자 주입 전극(음극) 과 정공 주입 전극(양극) 사이에 형성된 유기막에 전하를 주입하면 전자와 정공이 쌍을 이룬 후 소멸하면서 빛을

내는 소자이다. 플라스틱 같은 필 수 있는(flexible) 투명 기관 위에도 소자를 형성할 수 있을 뿐 아니라, 플라즈마 디스플레이 패널(Plasma Display Panel)이나 무기 전계 발광(EL) 디스플레이에 비해 낮은 전압에서 (10V이하) 구동이 가능하고, 또한 전력 소모가 비교적 적으며, 색깔이 뛰어나다는 장점이 있다. 또한 유기 전계 발광(EL) 소자는 녹색, 청색, 적색의 3가지 색을 나타낼 수가 있어 차세대 풍부한 색 디스플레이 소자로 많은 사람들의 관심의 대상이 되고 있다. 그러나, 종래의 유기 전계 발광 소자에서의 청색 발광 물질은 색순도가 떨어지고 그 수명이 짧은 단점이 있다.

유기 EL 소자를 제작하는 일반적인 과정을 살펴보면,

(1) 먼저, 투명기관 위에 양극 물질을 입힌다. 상기 양극 물질로는 흔히 ITO(indium tin oxide)가 쓰인다.

(2) 그 위에 정공주입층(HIL:hole injecting layer)을 입힌다. 상기 정공주입층으로는 주로 구리 프탈로시아닌(copper phthalocyanine(CuPC))을 10nm 내지 30nm 두께로 입힌다.

(3) 다음으로 정공수송층(HTL:hole transport layer)을 도입한다. 이러한 정공수송층으로는 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]바이페닐(4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenthylamino]-biphenyl(NPB)을 30nm 내지 60nm 정도 증착하여 입힌다.

(4) 그 위에 유기발광층 (organic emitting layer)을 형성한다. 이때 필요에 따라 불순물(dopant)을 첨가한다. 녹색(green) 발광의 경우 HOST로 트리스(3-하이



트록시퀴놀레이트)알루미늄( $\text{Alq}_3$ ) (tris(8-hydroxy-quinolate)aluminum)을

불순물(dopant)로 MQD(N-메틸퀴나크리돈)(N-Methylquinacridone) 또는 Coumarine 유도체를 1~2% 도핑하여 20nm~40nm 정도의 발광층을 형성한다.

(5) 그 위에 전자수송층(ETL:electron transport layer) 및 전자주입층(EIL: electron injecting layer)을 연속적으로 입힌다.

상기(4)의  $\text{Alq}_3$ 는 전자 주입 및 수송 능력을 동시에 하므로 전자 주입층을 따로 사용하지 않기도 한다.

(6) 다음 양극(cathode)을 입힌다. 이때 전자 주입을 보다 용이하게 하기 위하여 LiF,  $\text{Li}_2\text{O}$  등의 알칼리 산화물을 얇게 입힌 후 Al을 입힌다. 마지막으로 보호막을 덧 씌운다.

청색의 경우는 발광층 호스트(host)로 PBD, DPVBi와 같은 물질을 사용하고 불순물(dopant)로는 페릴렌(Perylene), 쿠마린(coumarine), 파이렌(pyrene)과 같은 물질을 통상 1~3% 수준으로 도핑하여 제작한다.

하지만 진한 청색(deep blue)을 얻기가 어렵고 단파장으로 갈수록 발광 수명이 짧아지는 문제점이 있어 천연색의 풀컬러 디스플레이(full color display)를 구현하는 데 있어 진한 청색(deep blue)재료의 개발이 절실히 요구된다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

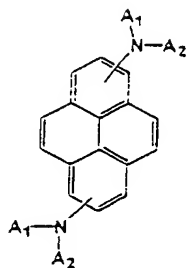
따라서, 본 발명은 상기와 같은 문제점을 해결하기 위해 안출된 것으로, 청색발광 물질로 새로운 물질을 합성하여 청색의 색순도가 우수하여 발광 특성이 향

상된 유기 전계 발광 소자를 제공하는데 그 목적이 있다.

#### [발명의 구성]

상기와 같은 목적을 달성하기 위해서, 본 발명은 음극/정공주입층/정공수송층/발광층/전자수송층/전자주입층/양극으로 구성되는 일반적인 유기 전계 발광 소자에 있어서, 아래의 구조를 가지는 물질을 발광물질로 사용하는 것을 특징으로 한다.

#### [화학식 1]



또한, 상기 물질은 다른 한가지 이상의 물질과 혼합하여 사용될 수 있으며, 혼합하여 사용시 상기 물질은 발광층의 총 중량을 기준으로 질량%가 0.1 - 90 질량%이다.

상기 발광층으로 함께 혼합하여 사용되는 물질은 다음과 같은 구조를 가진다.

#### B1 - X - B2 (화학식 2)

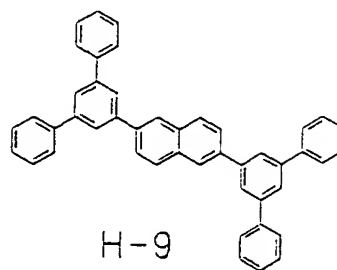
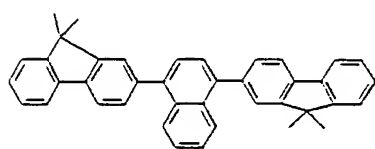
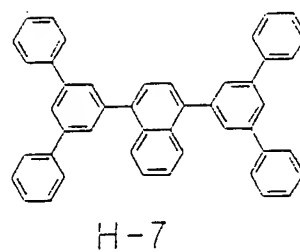
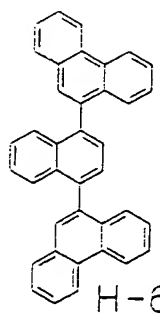
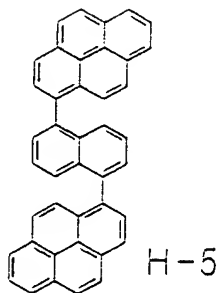
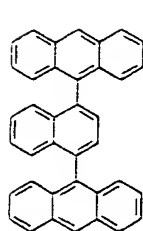
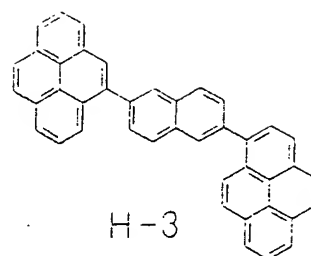
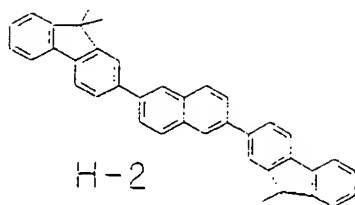
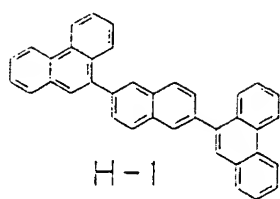
여기서 X는 융합된 방향족 화합물(fused Aromatic compounds)로부터 선택될 수 있으며 특히 나프탈렌(naphthalene), 안트라센 (anthracene) 페난트렌(phenanthrene), 파이렌(pyrene), 페릴렌(perylene) 및 퀴놀린(quinoline)

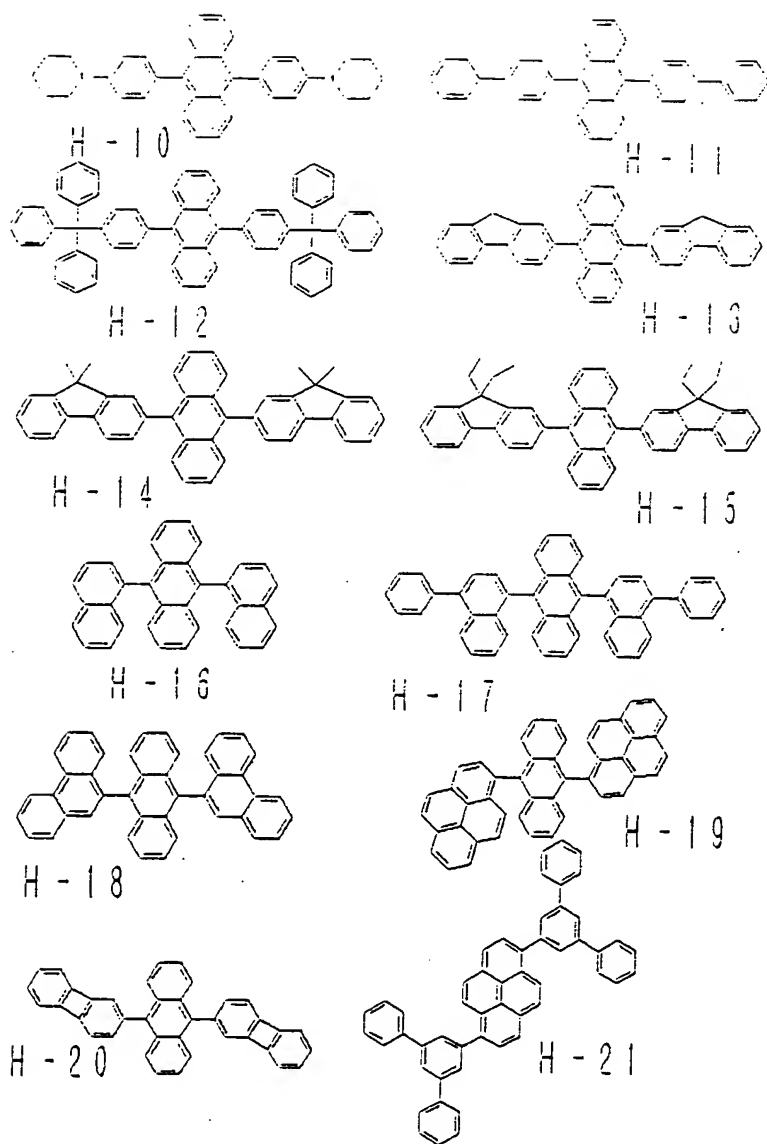
그룹으로 부터 선택될 수 있다.

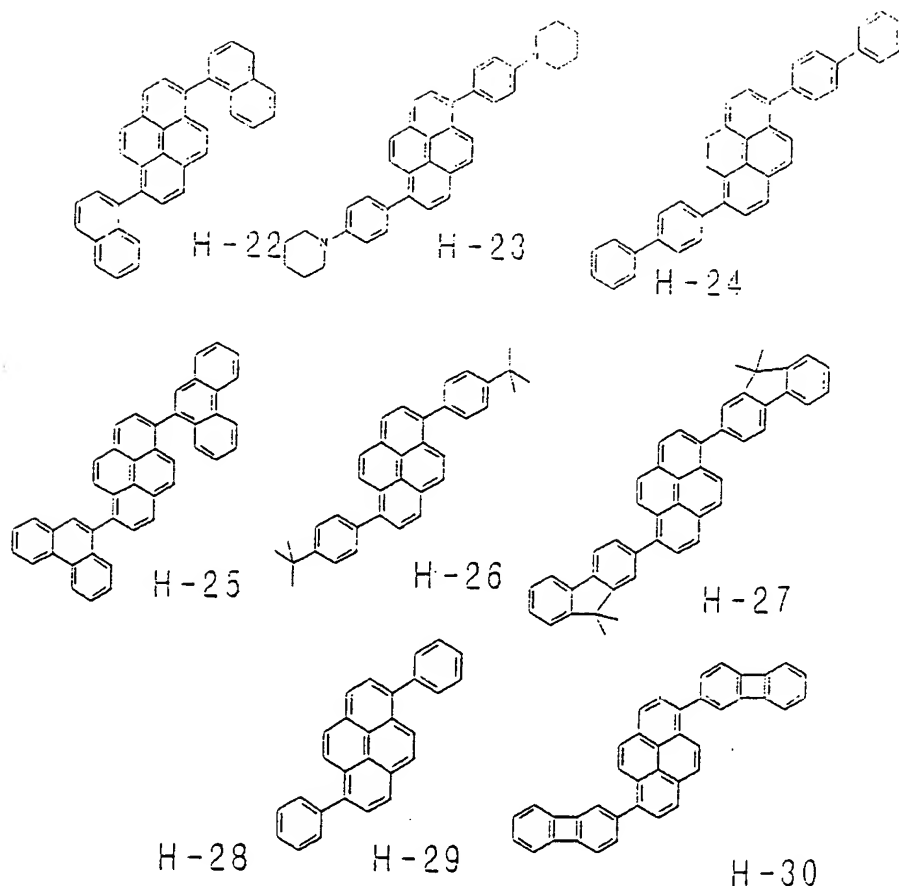
또한, B1, B2는 각각 아릴(aryl), 알킬아릴(alkylaryl), 알콕시아릴(alkoxyaryl), 아릴아미노아릴(arylaminoaryl), 알킬아미노아릴(alkylaminoaryl) 및 아릴알킬(arylalkyl)기로 이루어진 그룹으로 부터 선택될 수 있으며 특히 페닐(phenyl), 바이페닐(biphenyl), 파이리딜(pyridyl), 나프틸(naphthyl), 트리틸페닐(tritylphenyl), 바이페닐레닐(biphenylenyl), 안트릴(anthryl), 페난트릴(phenanthryl), 파이레닐(pyrenyl), 퍼릴렌일(perylene), 퀴놀릴(quinolyl), 아이소퀴놀릴(isoquinolyl), 플로레닐(fluorenyl), 터페닐(terphenyl), 롤릴(rolyl), 자일릴(Xyllyl), 메틸나프틸(methylnaphthyl), 그룹 및 수소으로부터 선택될 수 있다.

상기 화학식 2의 물질로 다음과 같은 물질이 사용될 수 있다.

【화학식 2】





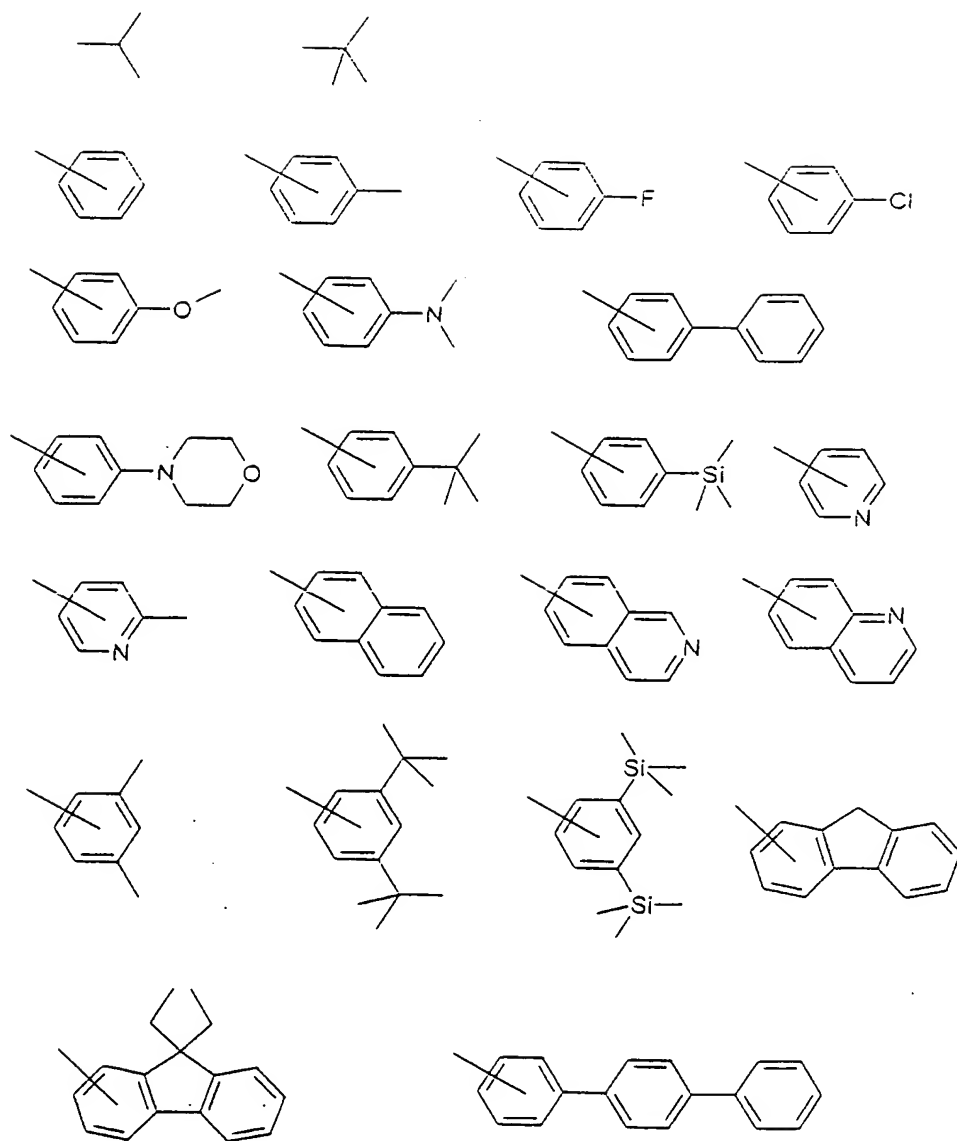


또한 상기 화학식1의 경우  $A_1$ 과  $A_2$ 는 각각 치환되거나 치환되지 않은 방향족 그룹, 이헥고리 그룹, 지방족 그룹 또는 수소로부터 선택될 수 있으며 특히 치환되거나 치환되지 않은 페닐(phenyl), 바이페닐(biphenyl), 파이리디닐(pyridyl), 나프틸(naphthyl), 퀴놀릴(quinolyl), 이소퀴놀릴(isoquinolyl), 플로레닐(fluorenyl), 터페닐(terphenyl) 및 메틸(methyl), 에틸(ethyl), 프로필(propyl), 이소프로필(i-propyl), t-부틸(t-butyl) 등으로부터 선택될 수 있으며,  $A_1$ ,  $A_2$  치환기는 각각 1개 이상일 수 있고, 알킬(alkyl), 알콕시(alkoxy), 알킬아미노(alkylamino), 알킬실릴(alkylsilyl), 할로젠(halogen), 아릴(aryl),

아릴옥시(aryloxy), 아릴아미노(arylamino), 아릴실릴(arylsilyl)기 중에서 선택될 수 있다. 예를들면 A1, A2의 치환기로 메틸(methyl), 에틸(ethyl), 프로필(propyl), 이소프로필(i-propyl), t-부틸(t-butyl), 사이클로헥실(cyclohexyl), 메톡시(methoxy), 에톡시(ethoxy), 프로폭시(propoxy), 부톡시(butoxy), 디메틸아미노(dimethylamino), 디에틸아미노(diethylamino), 트리메틸실릴(trimethylsilyl), 불소, 염소, 페녹시(phenoxy), 톨옥시(tolyoxy), 디페닐아미노(diphenylamino), 트리페닐실릴(triphenylsilyl)로부터 선택될 수 있다.

특히, 치환되거나 치환되지 않은 A1, A2는 화학식 3과 같은 구조를 갖는 물질로부터 선택될 수 있다.

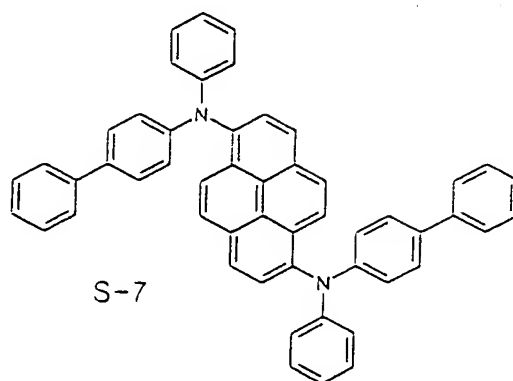
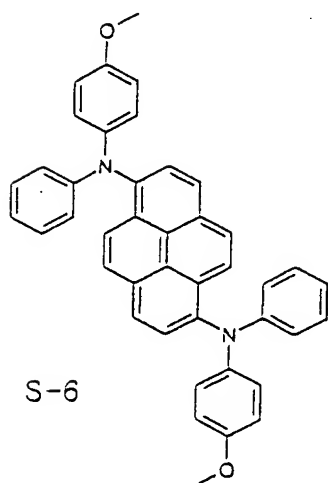
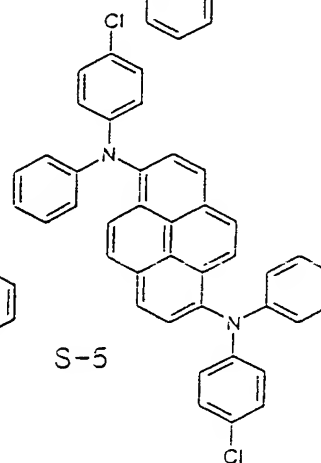
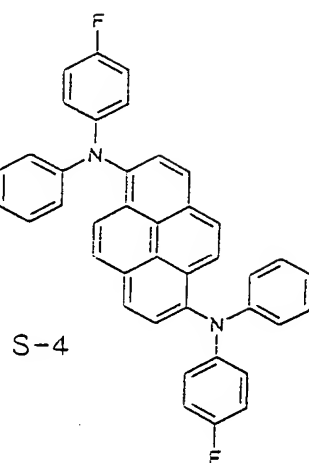
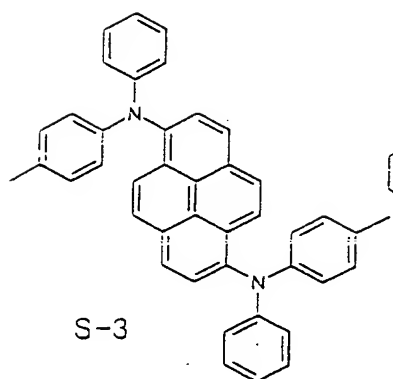
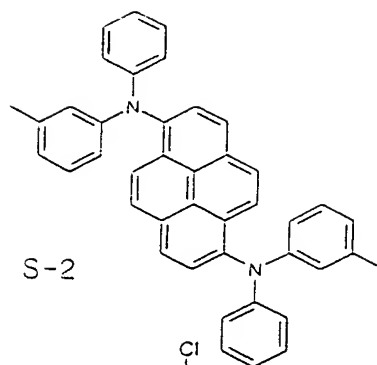
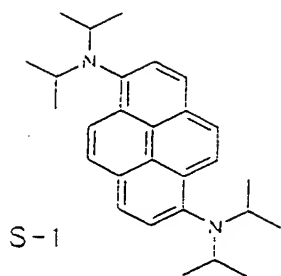
【화학식 3】

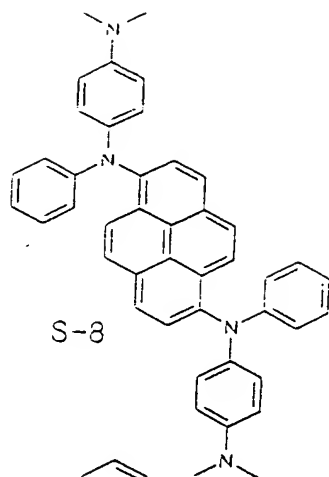


이러한 치환기 A<sub>1</sub>과 A<sub>2</sub>를 갖는 화학식1은 화학식4와 같은 구조를 갖는다.

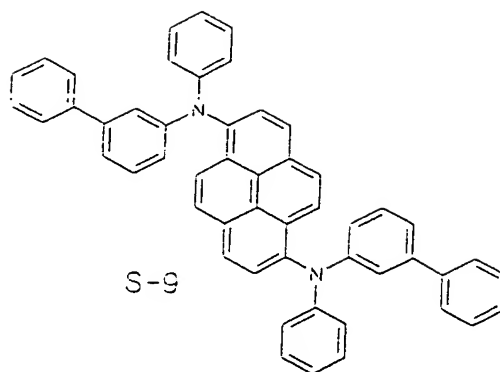


[화합식 4]

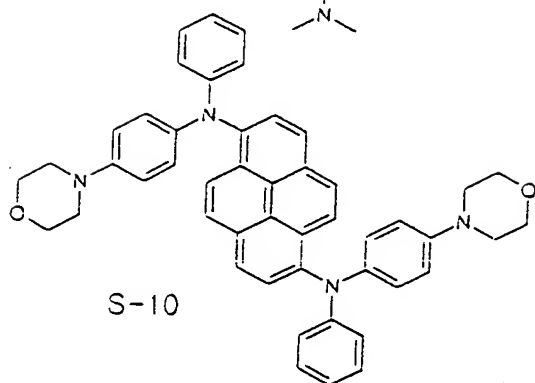




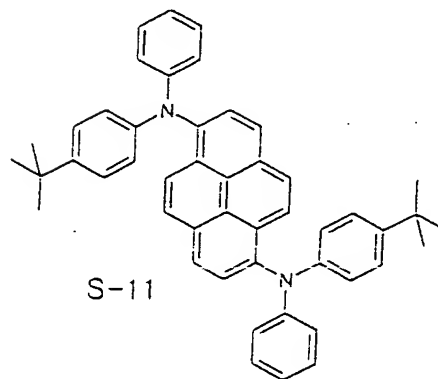
S-8



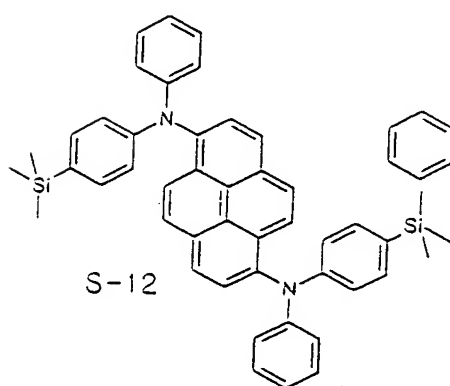
S-9



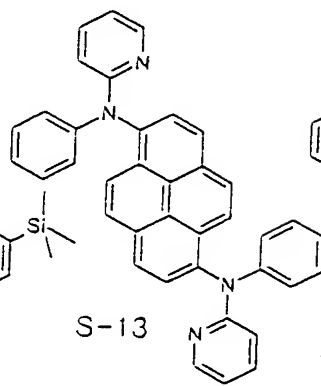
S-10



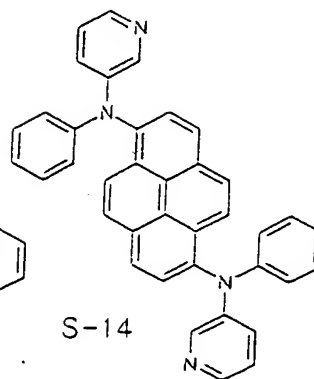
S-11



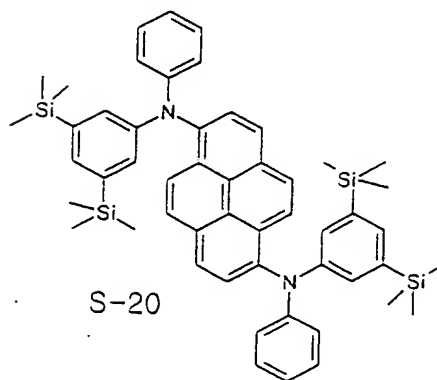
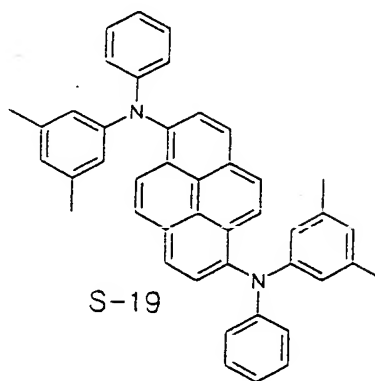
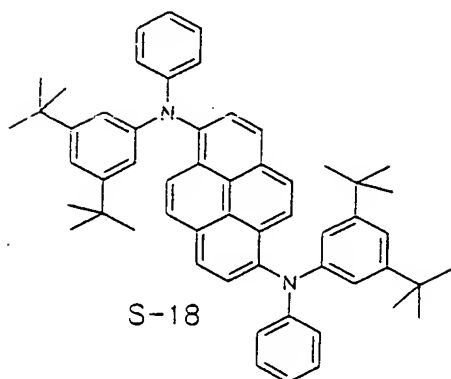
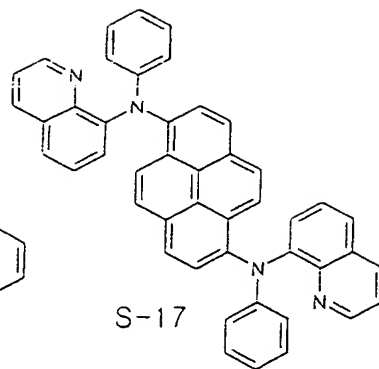
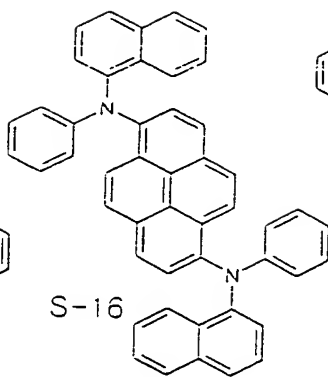
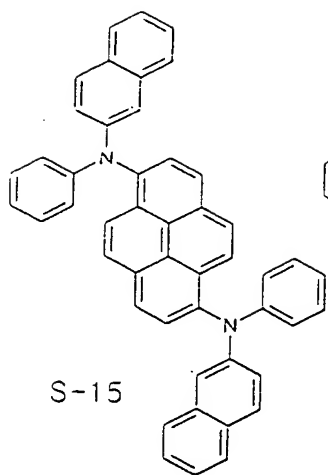
S-12

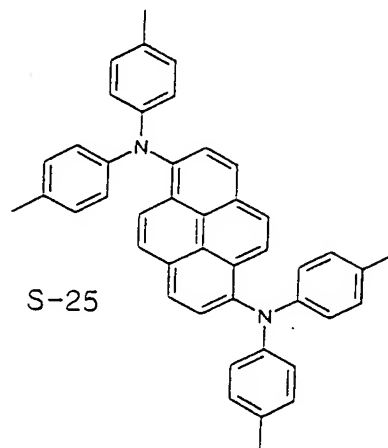
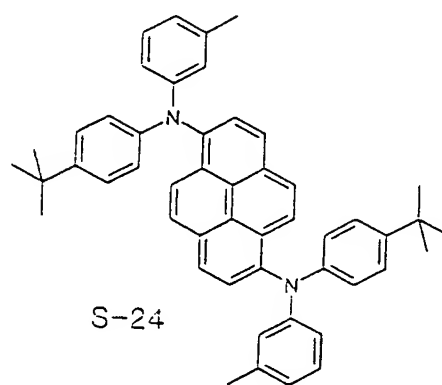
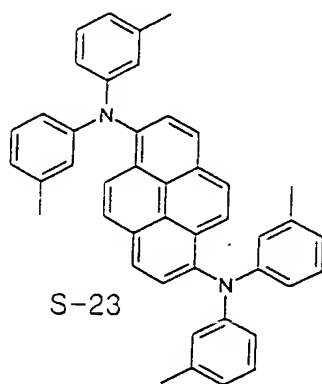
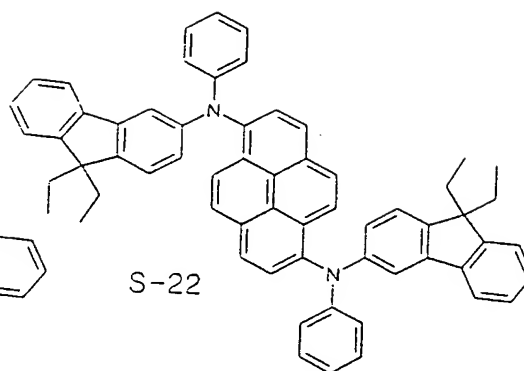
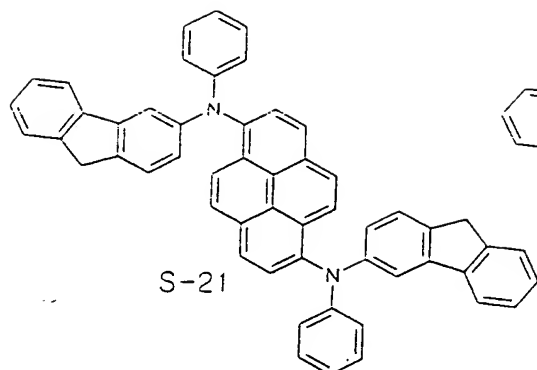


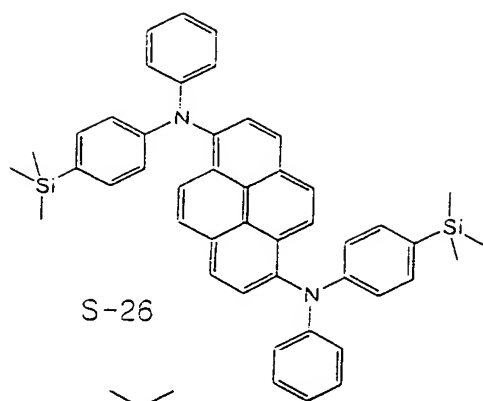
S-13



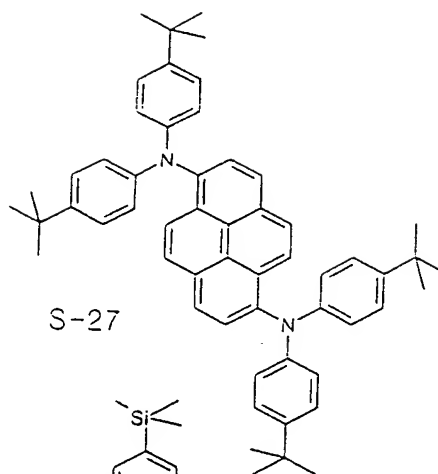
S-14



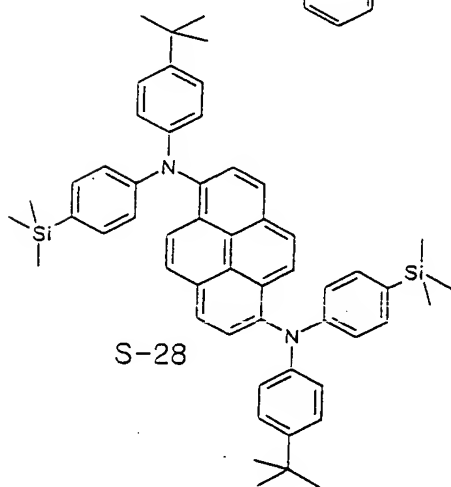




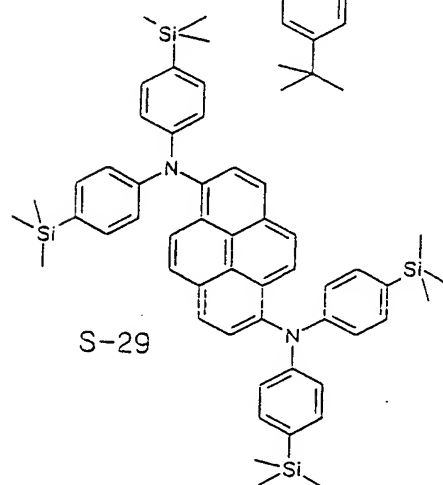
S-26



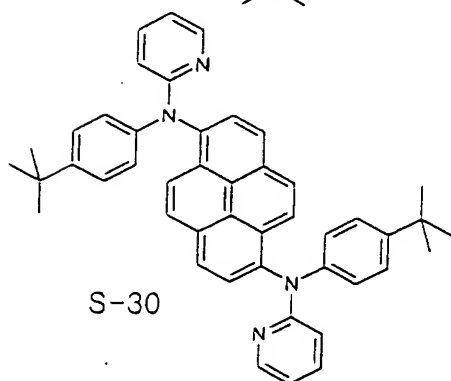
S-27



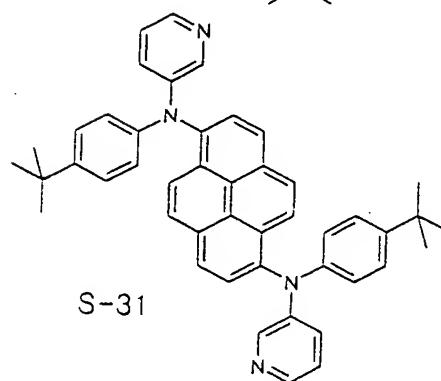
S-28



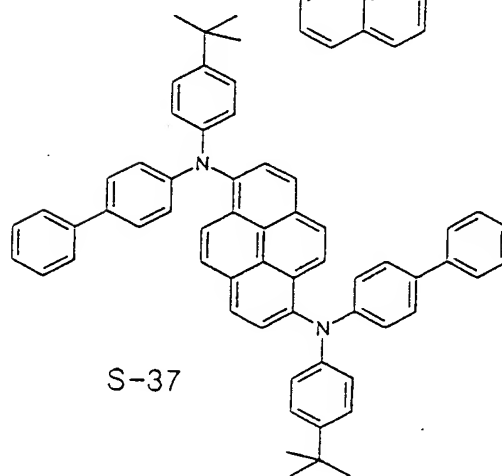
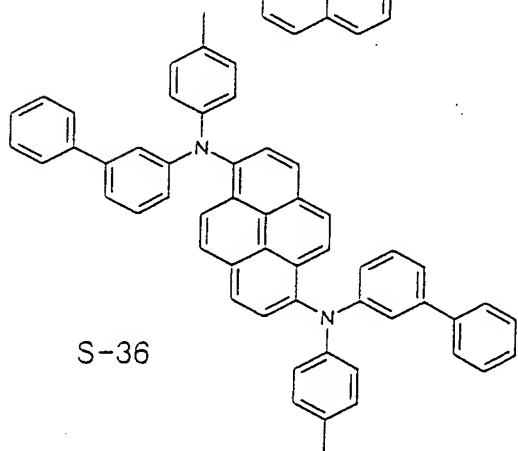
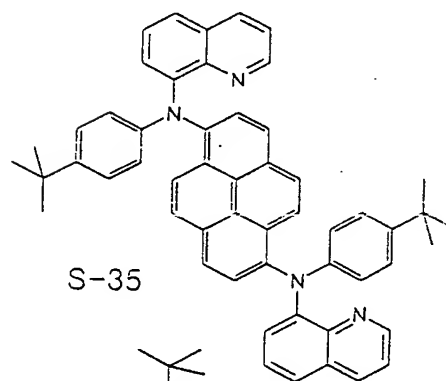
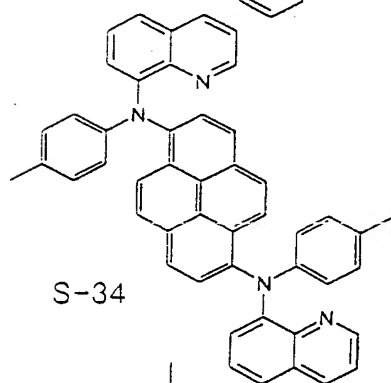
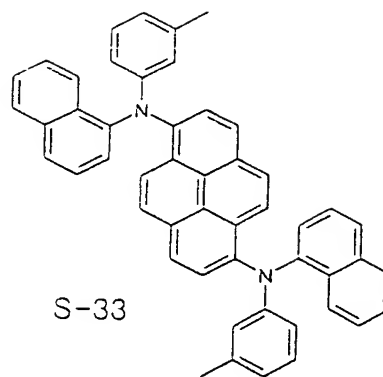
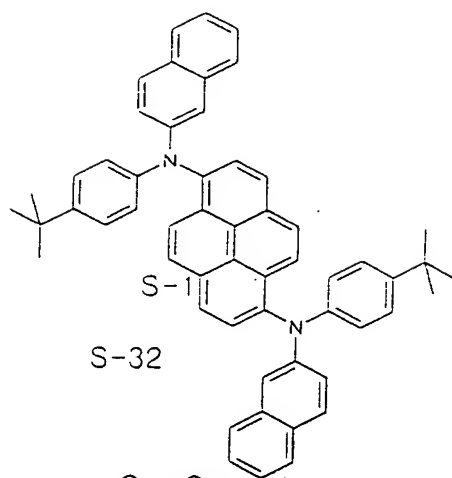
S-29

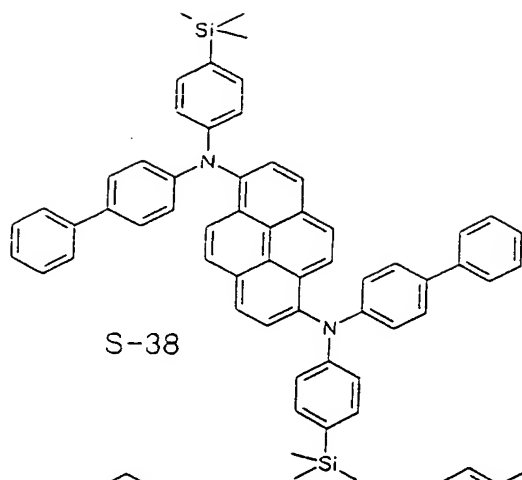


S-30

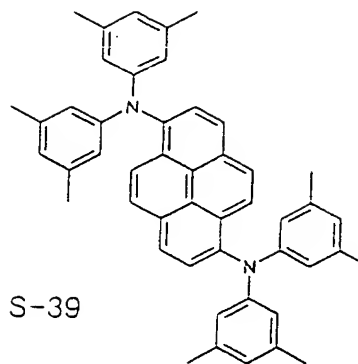


S-31

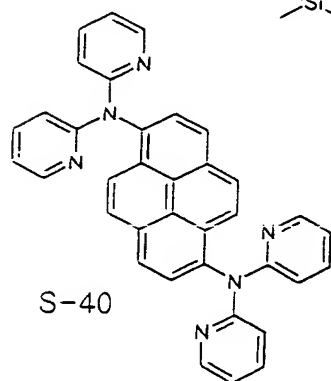




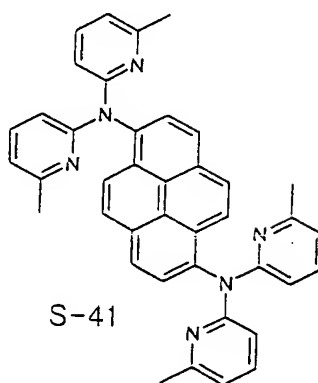
S-38



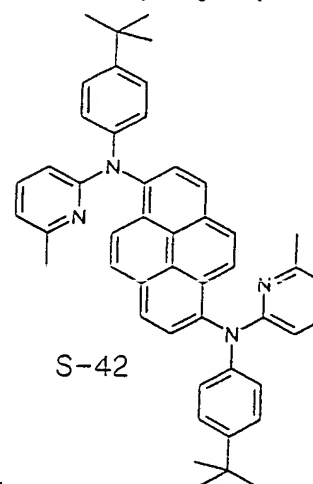
S-39



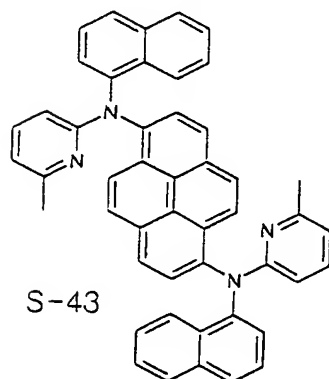
S-40



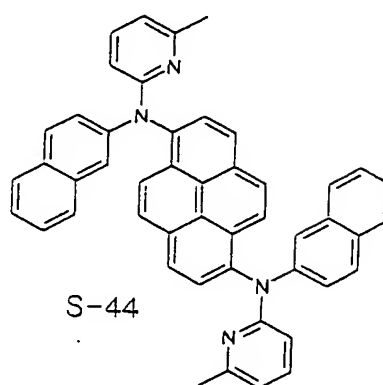
S-41



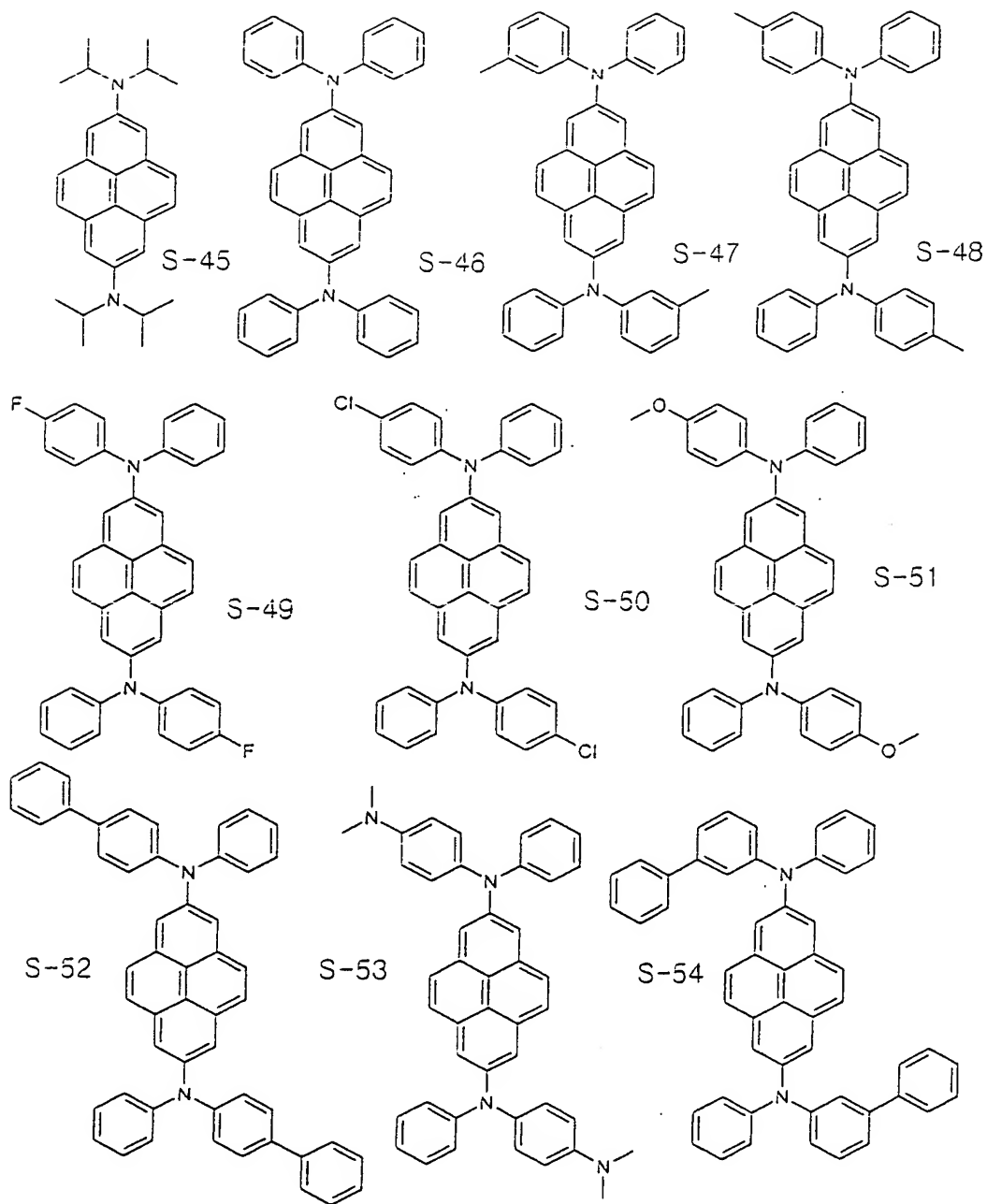
S-42



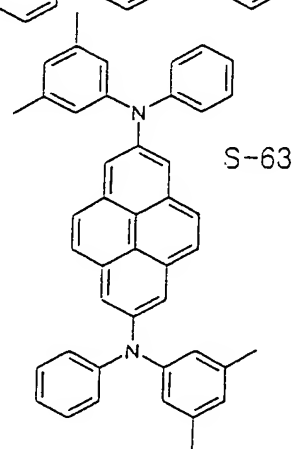
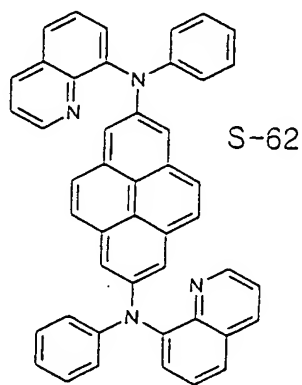
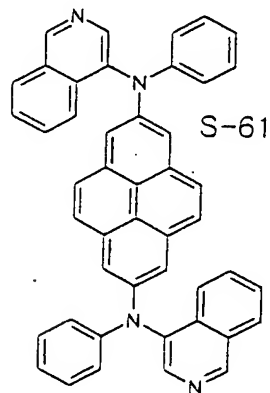
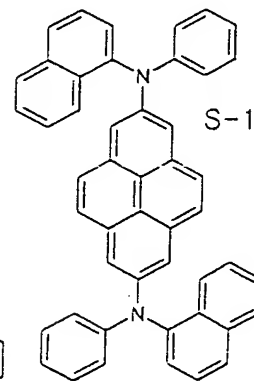
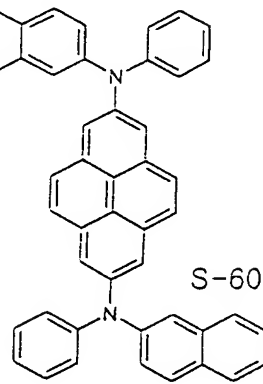
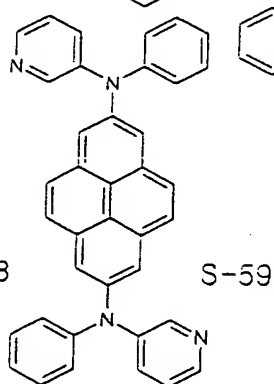
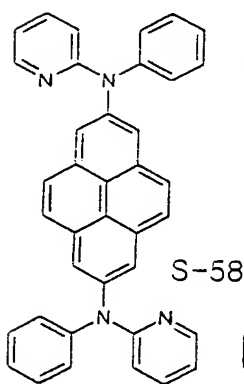
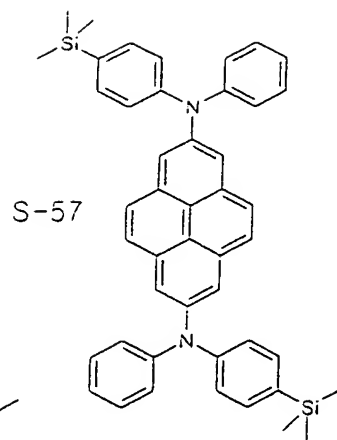
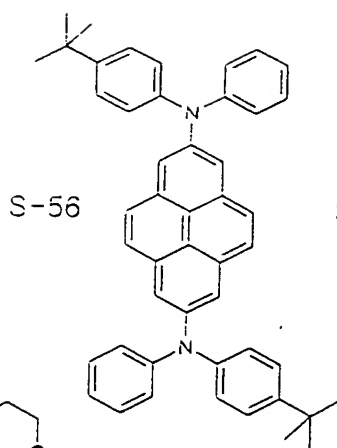
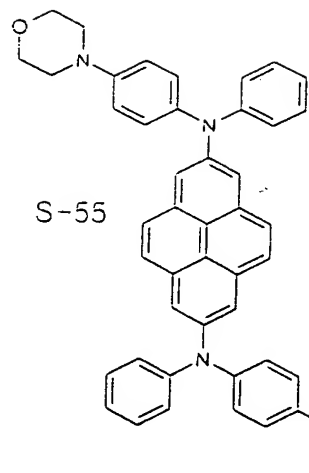
S-43

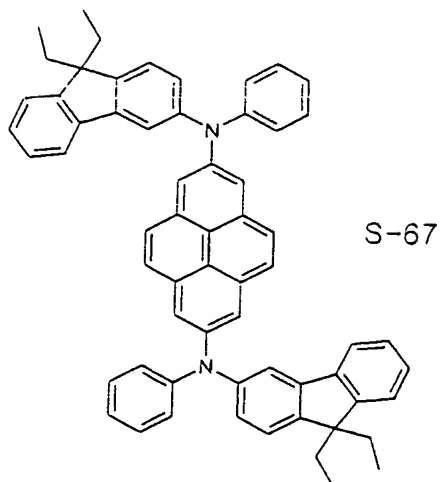
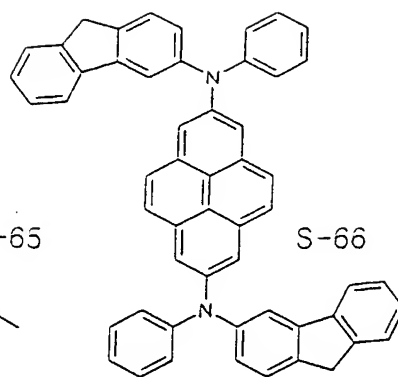
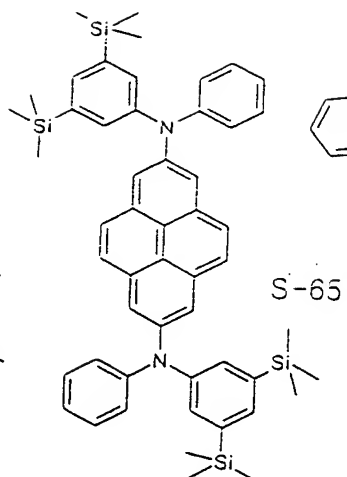
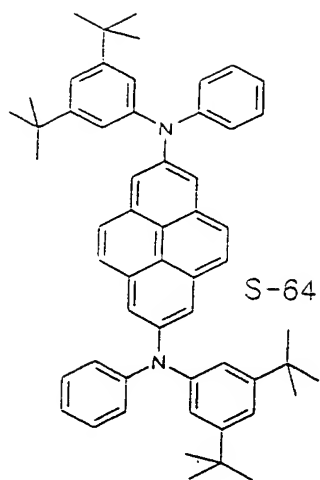


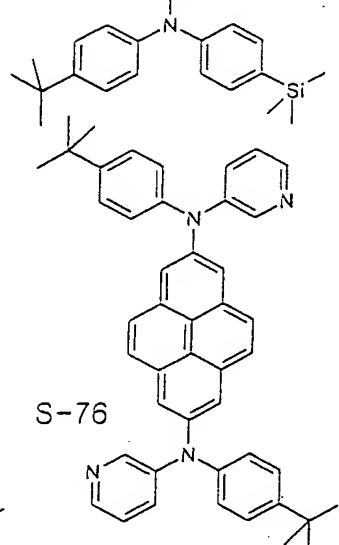
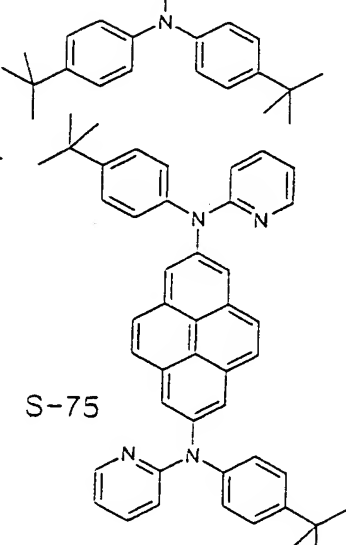
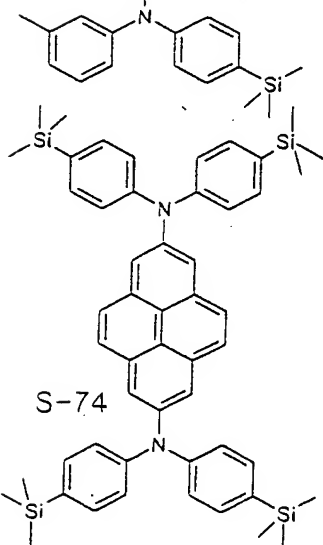
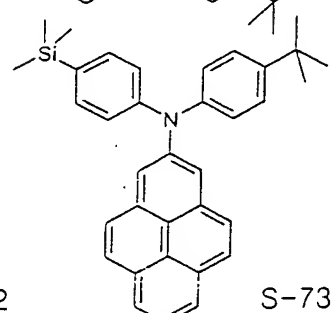
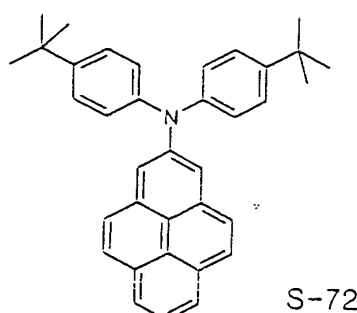
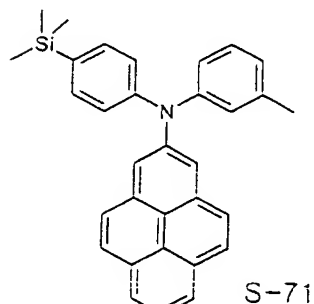
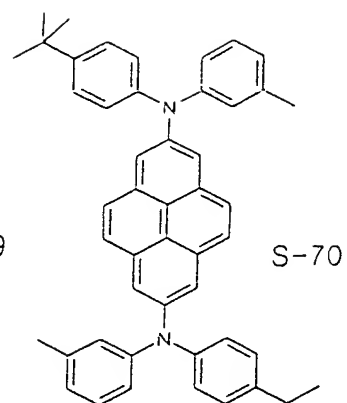
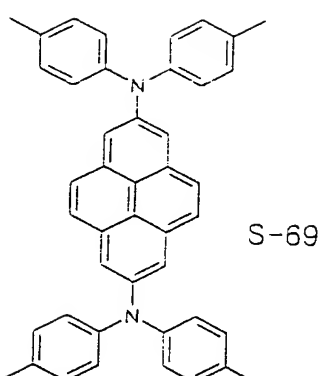
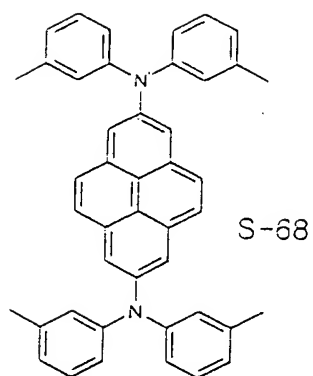
S-44

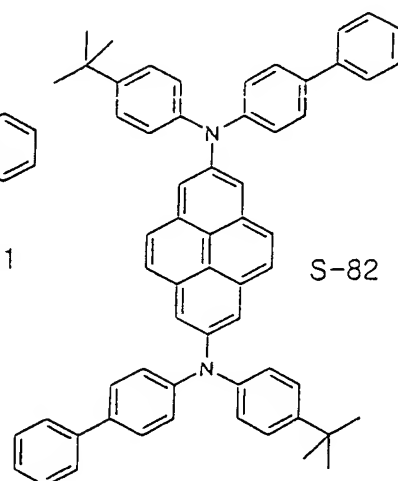
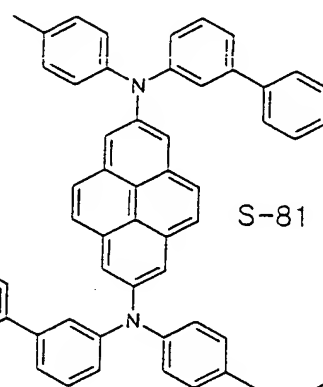
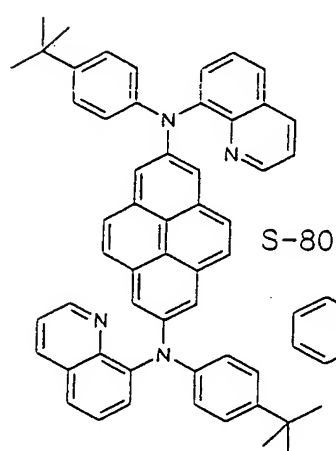
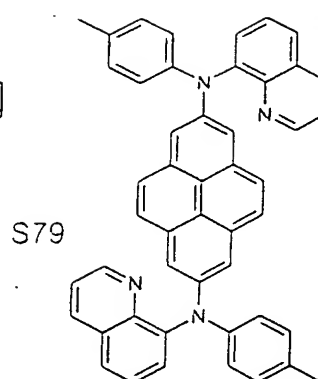
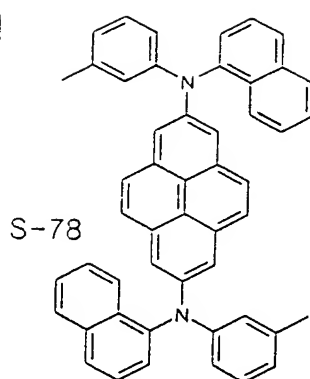
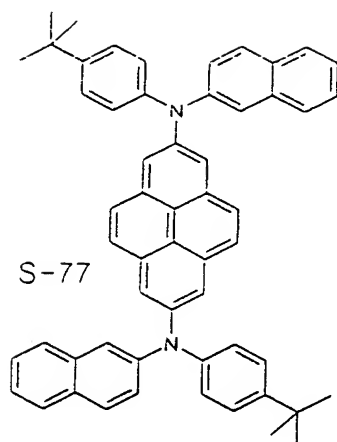


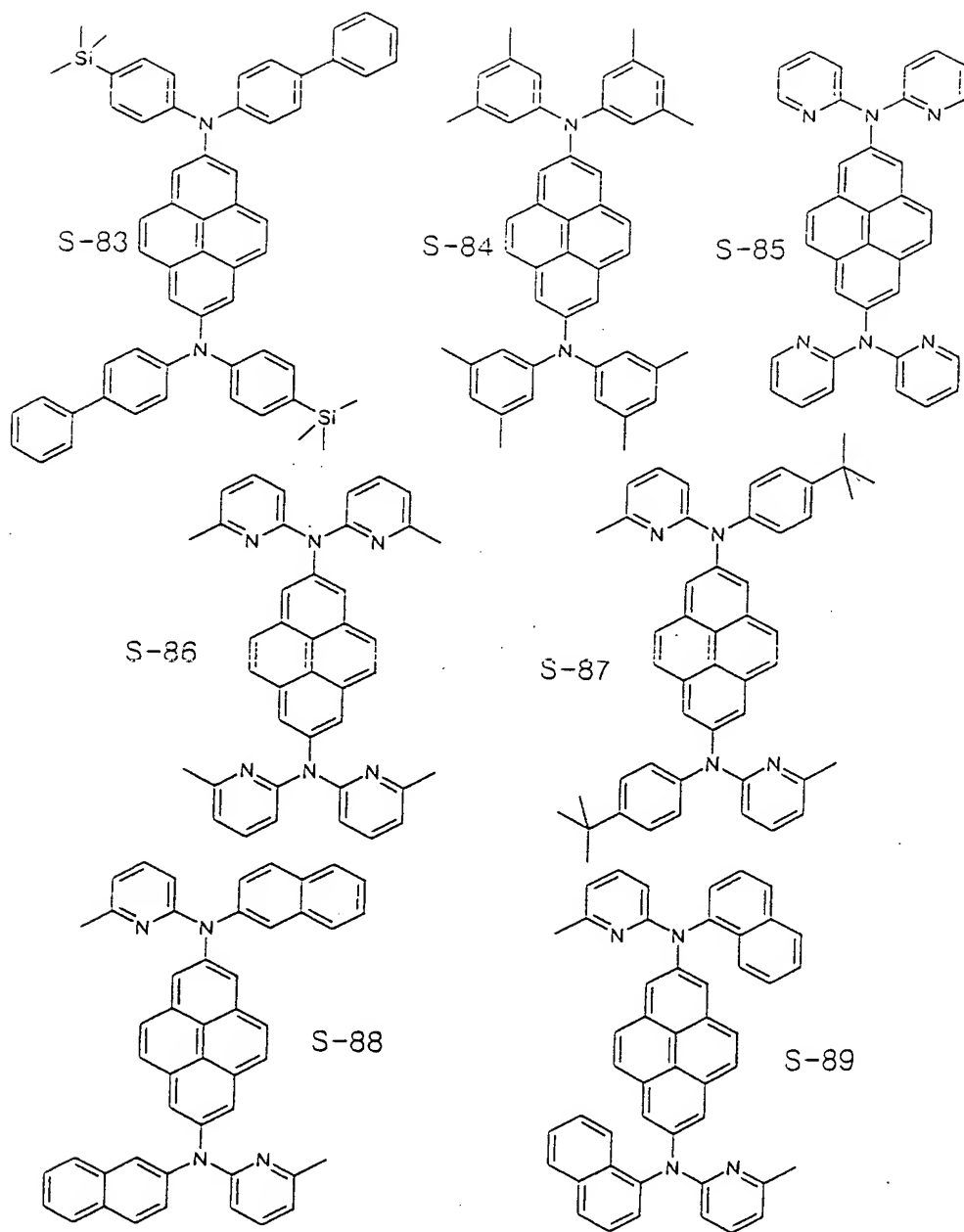










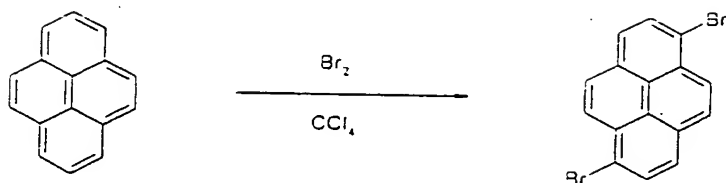


본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자에 있어서 청색 발광 물질로 사용되는

*N,N'*-Bis-(4-*tert*-butyl-phenyl)-*N,N'*-di-pyridin-2-yl-pyrene-1,6-diamine

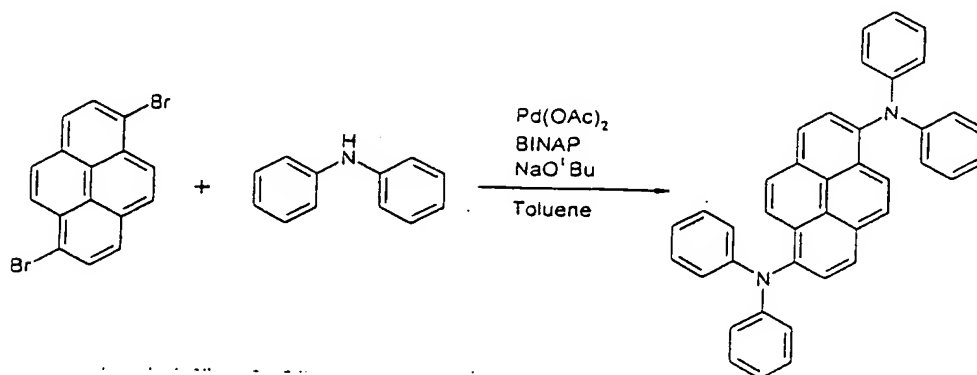
은 다음과 같이 합성된다.

### 1) 1,6-Dibromopyrene의 합성



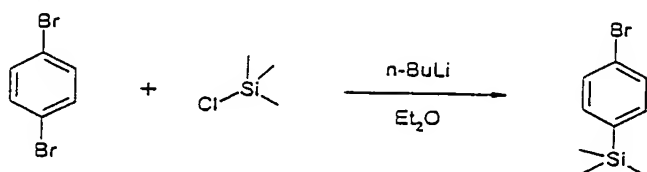
먼저 3구 둥근 바닥 플라스크에 파이렌(pyrene)(10g, 0.049mol)을  $\text{CCl}_4$ (300mL)에 녹인다. 둥근 바닥 플라스크에 설치된 dropping funnel에  $\text{Br}_2$ (17.38g, 0.108mol)와  $\text{CCl}_4$ (50mL)을 넣은 후 이것을 둥근 바닥 플라스크에 4시간에 걸쳐 천천히 적하시키며  $\text{N}_2$ 를 주입 발생되는  $\text{HBr}$ 을 제거시킨다. 드롭핑(dropping)이 끝나면 1시간을  $\text{N}_2$  기류 하에서 교반시킨 후 반응이 종결되면 생성된 침전물을 그대로 필터한 후 이 침전물을 다시 톨루엔을 사용하여 재결정하면 1,6-Dibromopyrene의 녹색 고체(6.05g, 34%)와 1,8-Dibromopyrene(5g, 28%)의 흰색 고체를 얻었다.

### 2) N,N,N',N'-Tetraphenyl-pyrene-1,6-diamine의 합성



2구 둥근 바닥 플라스크에 1,6-Dibromopyrene(3g, 0.0083mol), Diphenylamine(4.23g, 0.025mol), BINAP([2,2'-Bis(diphenylphosphino)-1,1'-binaphthyl])(0.052g, 1% mol), Pd(OAc)<sub>2</sub>[Palladium(II)acetate](0.019g, 1% mol)과 NaO<sup>t</sup>Bu[Sodium tert-butoxide](2.3g, 0.029mol)를 톨루엔(80mL)에 녹인 후 24시간 리플렉스(reflux)를 한다. 반응이 종결되면, 둥근 바닥 플라스크를 냉각시키고, 반응 용매인 톨루엔 40mL를 제거한 후 여기에 메탄올(100mL)을 첨가하면 침전물이 생기게 된다. 이것을 필터하면 원하는 N,N,N',N'-Tetraphenyl-pyrene-1,6-diamine(3.22g, 72%)의 노란색 고체를 얻을 수 있다.

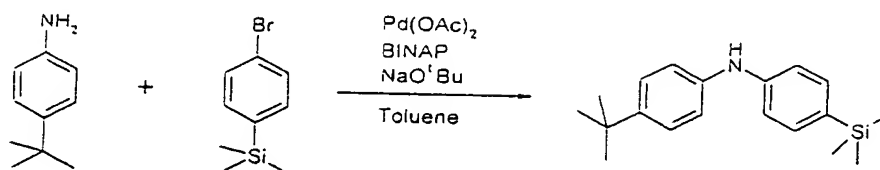
### 3) (4-Bromo-phenyl)-trimethyl-silane의 합성



먼저 3구 둥근 바닥 플라스크에 dropping funnel을 설치하고, 감압 하에서 건조시킨다. 그 후 둥근 바닥 플라스크에 1,4-Dibromobenzene(12.7g, 0.053mol)과 건조된 diethylether(300mL)를 넣고 용해 시킨다. 그리고 드라이아이스 배스(bath)를 설치한 후 dropping funnel에 n-BuLi(33.58mL, 0.0537mol)를 넣은 후 천천히 적하, 그 후에 -78℃에서 0℃로 온도를 1시간에 걸쳐 올리고 여기에 Chloro trimethylsilane(7.51mL, 0.059mol)을 천천히 적하하고 다시 온도를 상온으로 1시간에 걸쳐 올린다. 반응이 종결되면 물과 diethylether를 사용하여 추출하고 MgSO<sub>4</sub>

를 사용하여 물을 제거한 후 용매를 제거한 후 감압 하에서 분별증류를 하면 (4-Bromo-phenyl)-trimethyl-silane(11.3g, 92%)을 얻을 수 있다.

#### 4) (4-tert-Butyl-phenyl)-(4-trimethylsilyl-phenyl)-amine의 합성

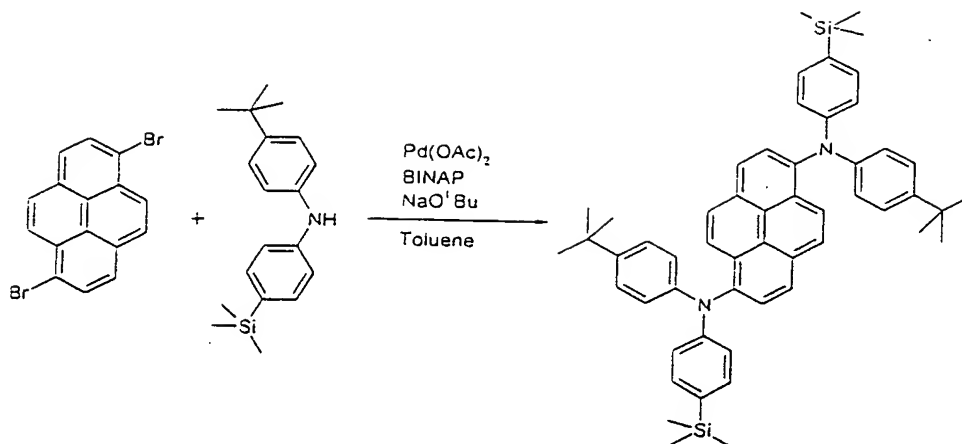


2구 둥근 바닥 플라시크에 4-tert-Butyl-phenylamine(1.2mL, 0.0076mol), (4-Bromo-phenyl)-trimethyl-silane(1g, 0.0044mol), BINAP(0.03g, 1%mol), Pd(OAc)<sub>2</sub>(0.01g, 1%mol)과 NaO<sup>t</sup>Bu(1.5g, 0.016mol)를 톨루엔(50mL)에 녹인후 24시간 리플렉스(reflux)를 한다. 반응이 종결되면, 둥근 바닥 플라시크를 냉각시키고, 반응용액인 톨루엔을 제거한 후 물과 methylene chloride를 사용하여 추출하고 MgSO<sub>4</sub>로 물을 제거하고 methylene chloride를 감압으로 제거하고 hexane을 사용하여 silica gel short column을 하고 에탄올과 물을 사용하여 침전이 생기면 이것을 필터하여 흰색 고체인 4-(4-tert-Butyl-phenyl)-(4-trimethylsilyl-phenyl)-amine(1.12g, 86%)을 얻을 수 있다.

#### 5) N,N'-Bis-(4-tert-butyl-phenyl)-N,N'-bis-(4-trimethylsilyl-phenyl)-

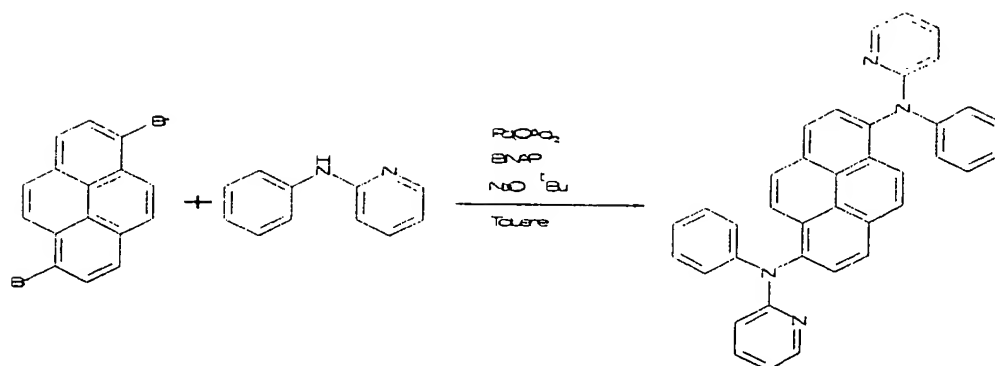


pyrene-1,6-diamine의 합성



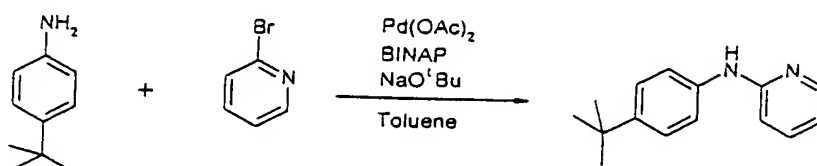
2구 둥근 바닥 플라스크에 1,6-Dibromopyrene(0.787g, 0.0022mol), (4-tert-Butyl-phenyl)-(4-trimethylsilyl-phenyl)-amine(1.56g, 0.00525mol), BINAP(0.054g, 4%mol), Pd(OAc)<sub>2</sub>(0.015g, 3%mol)와 NaO<sup>t</sup>Bu(0.93g, 0.0096mol)를 톨루엔(40mL)에 녹인 후 24시간 reflux를 한다. 반응이 종결되면, 둥근 바닥 플라스크를 냉각시키고, 반응 용매인 톨루엔을 제거한 후 물과 methylene chloride를 사용하여 추출하고 MgSO<sub>4</sub>로 물을 제거하고 methylene chloride를 감압으로 제거하고 silica gel chromatography를 용매 hexane:methylene chloride(6:1)을 사용하여 분리하고, 용매를 제거한 후 hexane을 사용하여 고체를 필터하면 녹색빛깔의 노란 고체인 N,N'-Bis-(4-tert-butyl-phenyl)-N,N'-bis-(4-trimethylsilyl-phenyl)-pyrene-1,6-diamine(1.09g, 63%)을 얻을 수 있다.

6) N,N'-Diphenyl-N,N'-di-pyridin-2-yl-pyrene-1,6-diamine의 합성



2구 둥근 바닥 플라스크에 2구 둥근 바닥 플라스크에 1,6-Dibromopyrene(1.2g, 0.0033mol), Phenyl-pyridin-2-yl-amine(1.36g, 0.008mol), BINAP(0.083g, 4%mol), Pd(OAc)<sub>2</sub>(0.022g, 3%mol)와 NaO<sup>t</sup>Bu(1.28g, 0.013mol)를 톨루엔(50mL)에 녹인 후 24시간 reflux를 한다. 반응이 종결되면 고체가 생성된다. 이것을 먼저 톨루엔을 50%정도 제거한 후 여기서 메탄올(70mL)을 첨가하여 필터를 하게 되면 녹란색 고체인 N,N'-Diphenyl-N,N'-di-pyridin-2-yl-pyrene-1,6-diamine(0.81g, 45%)을 얻을 수 있다.

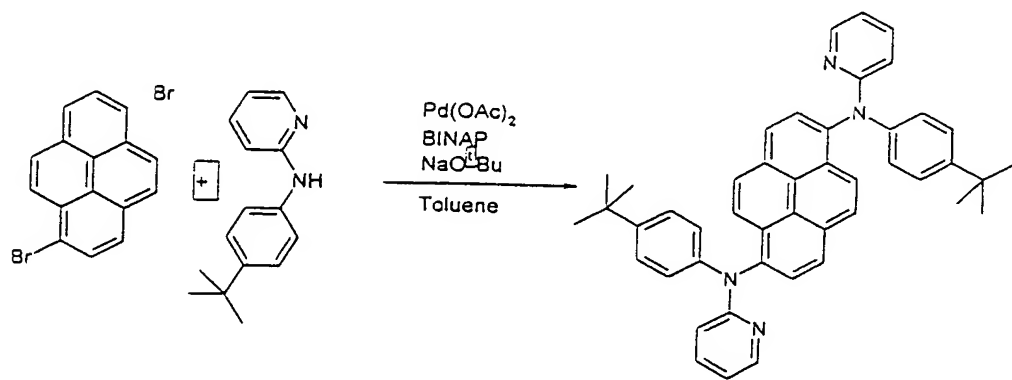
7) (4-tert-Butyl-phenyl)-pyridin-2-yl-amine의 합성



2구 둥근 바닥 플라스크에 4-tert-Butyl-phenylamine(1.2mL, 0.0076mol), 2-Bromo pyridine(1mL, 0.01mol), BINAP(0.06g, 4%mol), Pd(OAc)<sub>2</sub>(0.02g, 3%mol)과

NaO<sup>t</sup>Bu(1.5g, 0.016mol)를 톨루엔(50mL)에 녹인 후 24시간 리플렉스(reflux)를 한다. 반응이 종결되면, 둥근 바닥 플라스크를 냉각시키고, 반응 용매인 톨루엔을 제거한 후 물과 methylene chloride를 사용하여 추출하고 MgSO<sub>4</sub>로 물을 제거하고 methylene chloride를 감압으로 제거하고 methylene chloride를 사용하여 silica gel short column을 하고 hexane을 사용하여 침전이 생기면 이것을 필터하여 흰색 고체인 (4-tert-Butyl-phenyl)-pyridin-2-yl-amine(1.32g, 73%)을 얻을 수 있다.

8)N,N'-Bis-(4-tert-butyl-phenyl)-N,N'-di-pyridin-2yl-pyrene-1,6-diamine  
의 합성



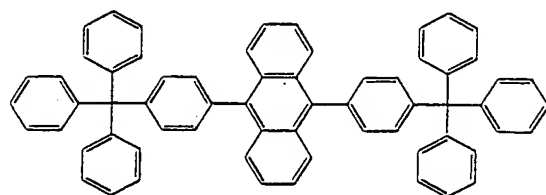
2구 둥근 바닥 플라스크에 1,6-Dibromopyrene(1g, 0.0028mol), (4-tert-Butyl-phenyl)-pyridin-2-yl-amine(1.51g, 0.0067mol), BINAP(0.07g, 4%mol), Pd(OAc)<sub>2</sub>(0.02g, 3%mol)와 NaO<sup>t</sup>Bu(1.18g, 0.012mol)를 톨루엔(45mL)에 녹인 후 24시간 reflux를 한다. 반응이 종결되면 고체가 생성된다. 이것을 먼저 톨루엔을 50%정

도 제거한 후 여기에 메탄올(70mL)을 첨가하여 필터를 하고 methylene chloride를 사용하여 silica gel short column을 하여 용매를 제거하면 N,N'-Bis-(4-tert-butyl-Phenyl)-N,N'-di-pyridin-2-yl-pyrene-1,6-diamine(0.99g, 60%)을 얻을 수 있다.

이하, 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자의 바람직한 양태를 실시예로 설명한다.

#### 실시예

ITO(Indium Tin Oxide)(산화인듐주석) 기판(glass)의 발광 면적이 3mm×3mm 크기가 되도록 패터닝(patterning)한 후 세정한다. 기판을 진공 챔버에 장착한 후 기본 압력이  $1 \times 10^{-5}$  torr가 되도록 한 후 유기물을 ITO위에 CuPC(200 Å), NPB(500 Å), 발광층(300 Å), Alq<sub>3</sub>(200 Å), LiF(5 Å), Al(1000 Å)의 순서로 성막하였다. 이때 발광층의 제 1 HOST로 아래 그림의 물질을 사용했으며 불순물로 사용된 S-28과의 혼합비 1:0.01로 하였다.



HOST-1

1) 불순물로 S-26을 사용하여 1mA의 전류를 흘려 주었을 때 3.2cd/A를 얻었고, 이때 CIE는 x=0.146, y=0.205이었다.

2) 불순물로 S-28을 사용하여 1mA의 전류를 흘려 주었을 때 3.4cd/A을 얻었고, 이때 CIE는  $x=0.15$ ,  $y=0.196$ 이었다.

## 2. 비교예

ITO glass의 발광 면적이 3mm×3mm크기가 되도록 patterning한 후 세정하였다. 기판을 진공 챔버에 장착한 후 기본 압력이  $1 \times 10^{-5}$  torr가 되도록 한 후 유기들을 ITO위에 CuPC(200 Å), NPB(300 Å), 발광층(host-1:200 Å), Alq<sub>3</sub>(400 Å), LiF(5 Å), Al(1000 Å)의 순서로 성막하였다. 1mA에서 1.8cd/A을 나타내었으며 이때 CIE는  $x=0.194$ ,  $y=0.297$ 을 나타내었다.

### 【발명의 효과】

본 발명은 유기발광체의 청색발광물질로서 상기와 같이 색순도가 높은 화합물을 사용함으로써 청색의 색순도가 높은 유기 전계 발광 소자를 얻을 수 있다.

이상 설명한 내용을 통해 당업자라면 본 발명의 기술 사상을 일탈하지 아니하는 범위에서 다양한 변경 및 수정이 가능함을 알 수 있을 것이다.

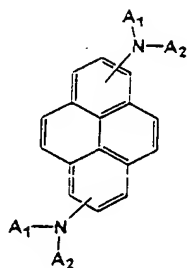
따라서, 본 발명의 기술적 범위는 실시예에 기재된 내용으로 한정되는 것이 아니라 특허 청구의 범위에 의하여 정해져야 한다.

【특허청구범위】

【청구항 1】

전자 주입 전극(음극)과 정공 주입 전극(양극) 사이에 발광층을 포함하는 유기전계 발광 소자로서, 상기 발광층의 청색 발광물질이 하기의 화학식 1로 나타내어지는 유기 전계 발광 소자.

[화학식 1]



(상기 식에서  $A_1$  및  $A_2$ 는 각각 독립적으로 치환되거나 치환되지 않은 방향족 그룹, 이형고리 그룹, 지방족 그룹, 수소로부터 선택된다.)

【청구항 2】

제 1 항에 있어서,

상기 발광층은 화학식 1의 물질과 다른 물질과 혼합되어 적어도 2가지 이상의 물질로 형성되며, 상기 2가지 이상의 물질로 형성된 발광층은 발광층 총 중량을 기준으로 화학식 1의 물질의 질량%가 0.1% - 90질량%인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

【청구항 3】

제 2 항에 있어서,

상기 발광층으로서 상기 화학식 1의 물질과 함께 혼합하여 사용되는 물질은 B1 - X - B2 (화학식2) 구조식을 가지며, 상기 X는 융합된 방향족 화합물(fused Aromatic compounds), 상기 B1, B2는 각각 아릴(aryl), 알킬아릴(alkylaryl), 알콕시아릴, 아릴아미노아릴(arylaminoaryl), 알킬아미노아릴(alkylamino) 및 아릴알릴(arylallyl)기로 이루어진 그룹으로부터 선택된 물질인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

【청구항 4】

제 3 항에 있어서,

상기 X는 나프탈렌(naphthalene), 안트라센 (anthracene) 페난트렌(phenanthrene), 파이렌(pyrene), 페릴렌(perylene) 및 퀴놀린(quinoline) 그룹으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

【청구항 5】

제 3 항에 있어서,

상기 B1, B2는 각각 페닐(phenyl), 바이페닐(biphenyl), 파이리딜(pyridyl), 나프틸(naphthyl), 트리틸페닐(tritylphenyl), 바이페닐레닐(biphenylenyl), 안트릴 (anthryl), 페난트릴(phenanthryl), 파이레닐(pyrenyl), 퍼릴렌일(perylenyl), 퀴놀릴(quinolyl), 아이소퀴놀릴 (isoquinolyl), 플로레닐(fluorenyl), 터페닐(terphenyl), 톨릴(tolyl), 자일릴(xylyl), 메틸나프틸(methylnaphthyl) 및 수소으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광

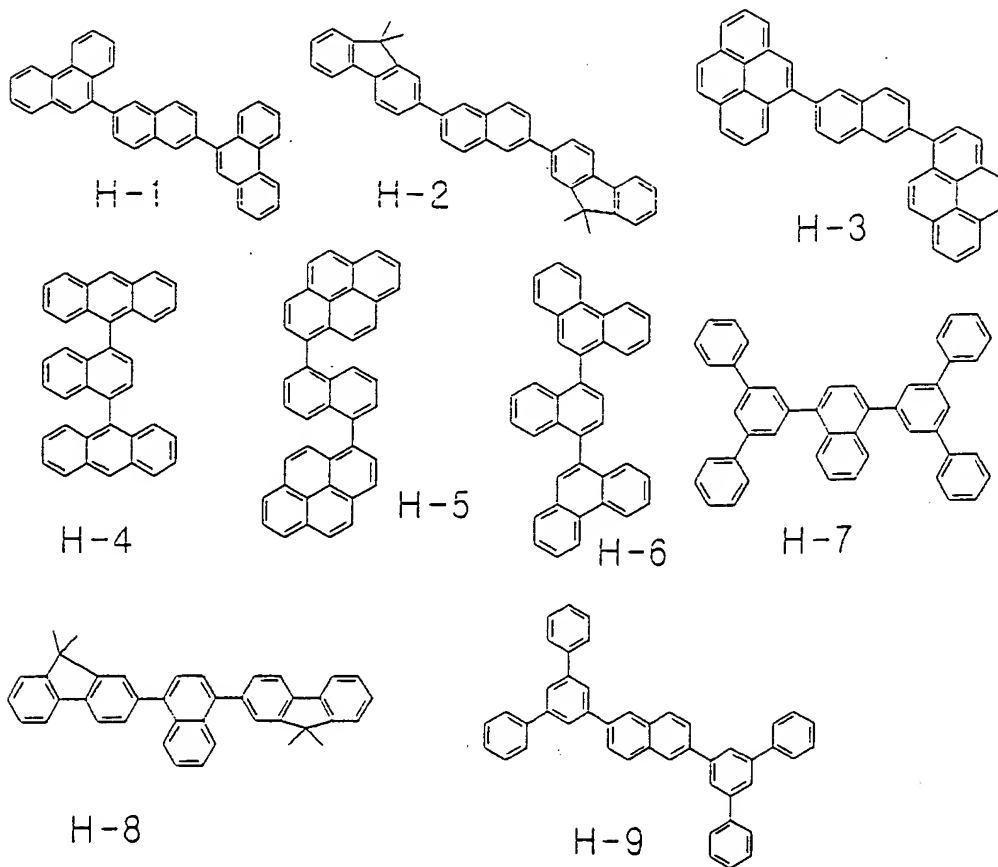
소자.

[청구항 6]

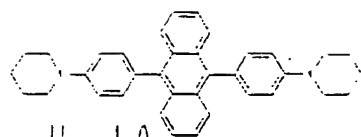
제 3 항에 있어서,

상기 물질은 다음과 같은 물질중에 적어도 하나 이상 선택되어 사용되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

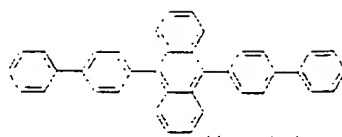
[화학식 2]



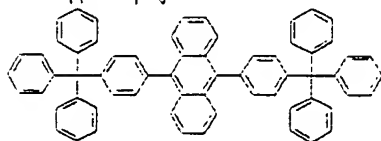




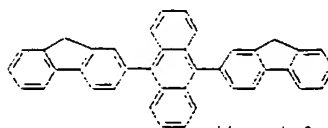
H - 10



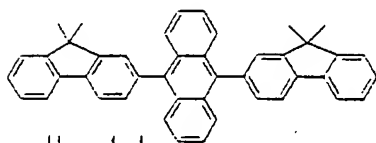
H - 11



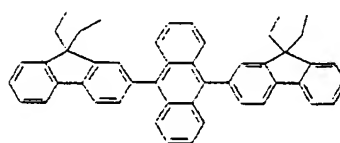
H - 12



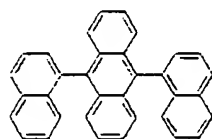
H - 13



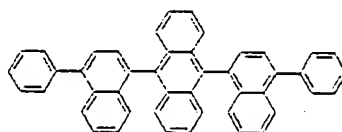
H - 14



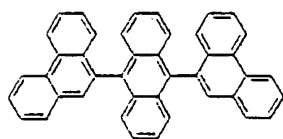
H - 15



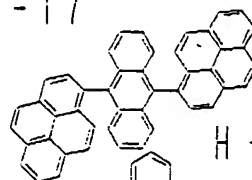
H - 16



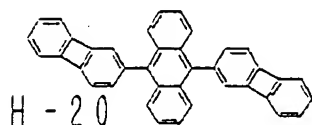
H - 17



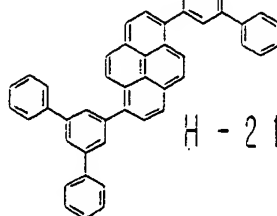
H - 18



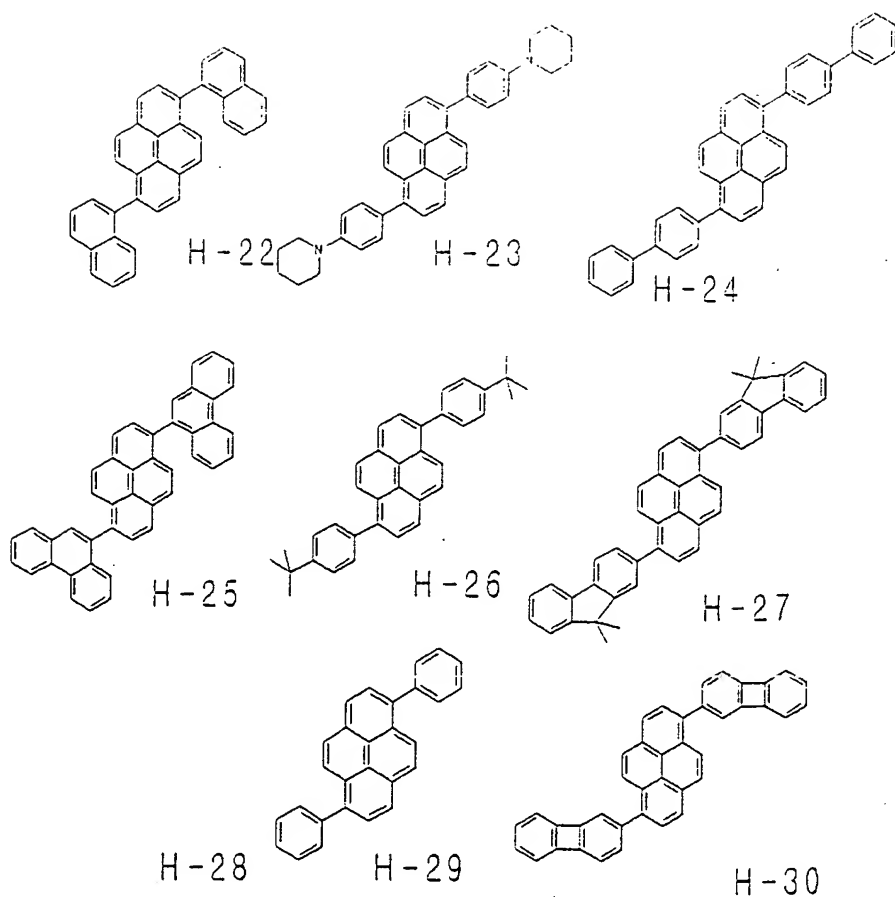
H - 19



H - 20



H - 21



【청구항 7】

제 1 항에 있어서,

상기 A1, A2는 치환되거나 치환되지 않은 페닐(phenyl), 바이페닐(biphenyl), 파이리디닐(pyridyl), 나프틸(naphthyl), 퀴놀릴(quinolyl), 이소퀴놀릴(isoquinolyl), 플로레닐(fluorenyl), 터페닐(terphenyl) 및 메틸(methyl), 에틸(ethyl), 프로필(propyl), 이소프로필(i-propyl), t-부틸(t-buthyl)등으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

【청구항 8】

제 1 항에 있어서,

상기 치환된 각각의 A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub>의 치환기는 각각 1개 이상이며, 알킬(alkyl), 알콕시(alkoxy), 알킬아미노(alkylamino), 알킬실릴(alkylsilyl), 할로겐(halogen), 아릴(aryl), 아릴옥시(aryloxy), 아릴아미노(arylamino), 아릴실릴 (arylsilyl)기 및 수소 중에서 선택되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

【청구항 9】

제 8 항에 있어서,

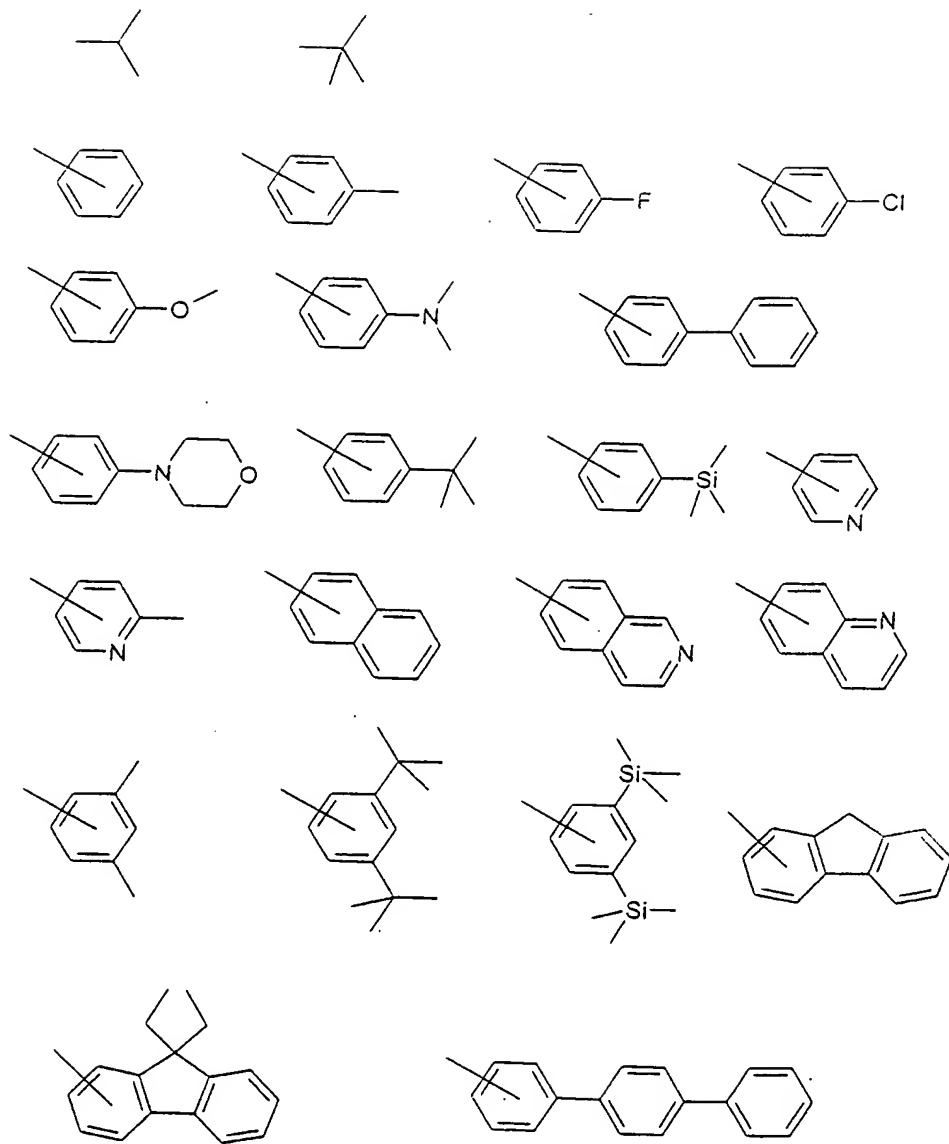
상기 치환기는 메틸(methyl), 에틸(ethyl), 프로필(propyl), 이소프로필(isopropyl), t-부틸(t-butyl), 사이클로헥실(cyclohexyl), 메톡시(methoxy), 에톡시(ethoxy), 프로폭시(propoxy), 부톡시(butoxy), 디메틸아미노(dimethylamino), 트리메틸실릴(trimethylsilyl), 불소, 염소, 페녹시(phenoxy), 톨릴옥시(tolyloxy), 디메틸아미노(dimethylamino), 디에틸아미노(diethylamino), 디페닐아미노(diphenylamino), 트리페닐실릴(triphenylsilyl)로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

【청구항 10】

제 1 항에 있어서,

상기 A<sub>1</sub>과 A<sub>2</sub>는 다음의 화학식 4 중 어느 하나인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

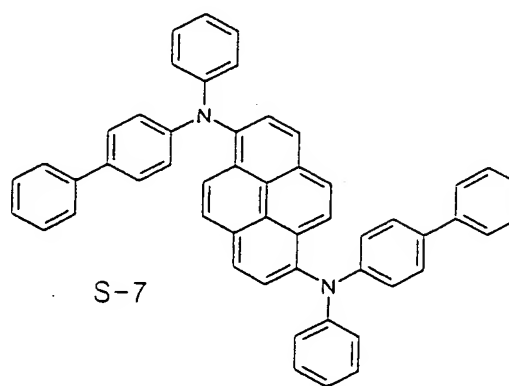
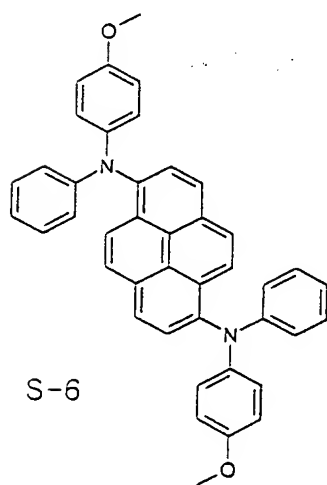
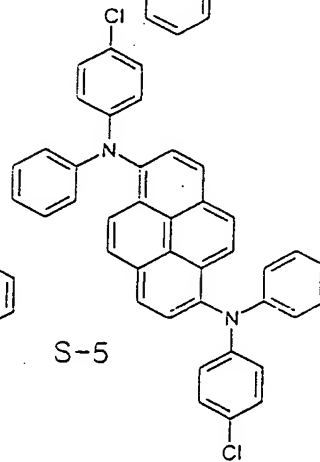
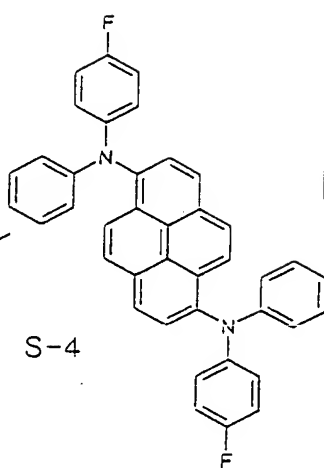
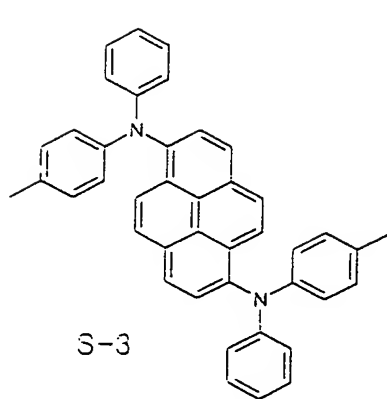
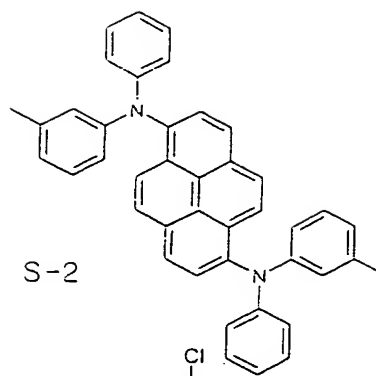
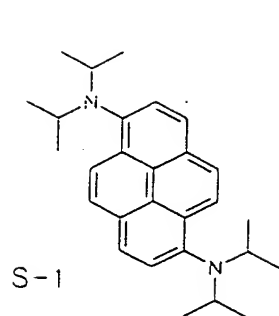
[ 화학식 3 ]

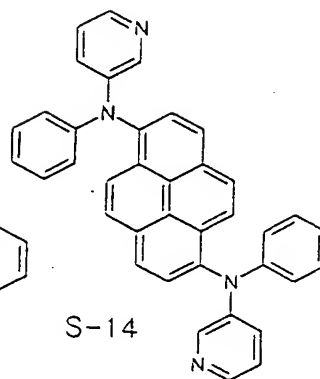
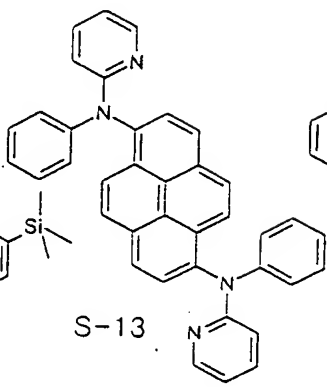
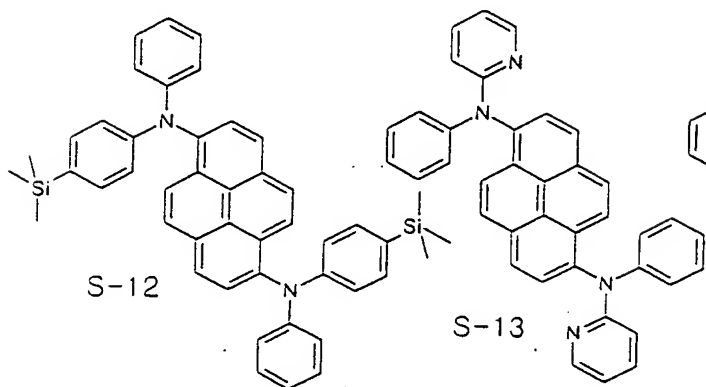
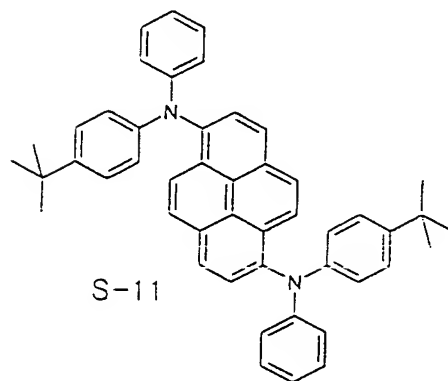
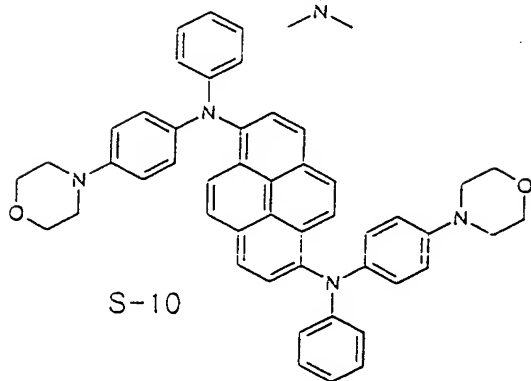
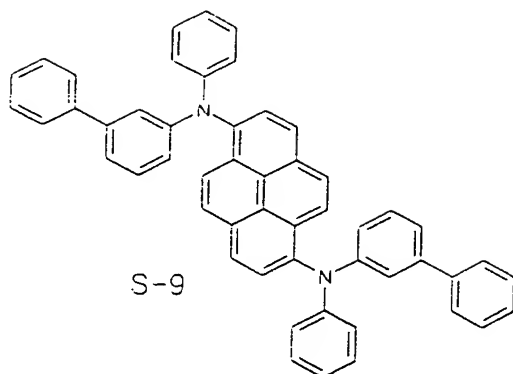
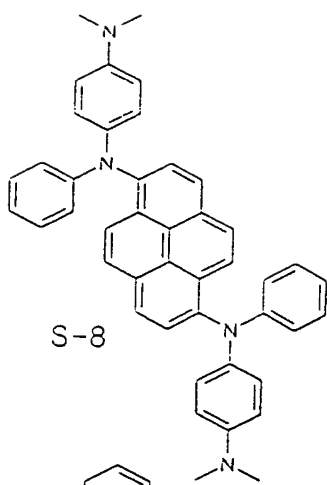


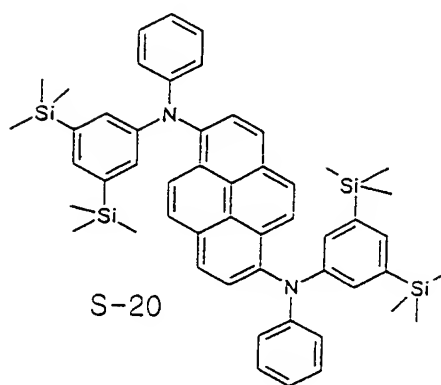
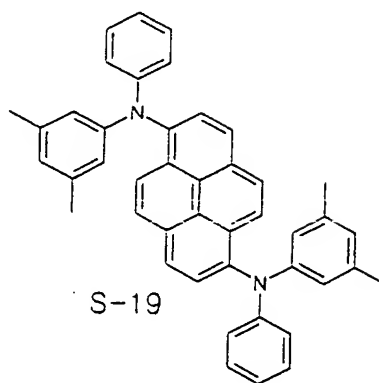
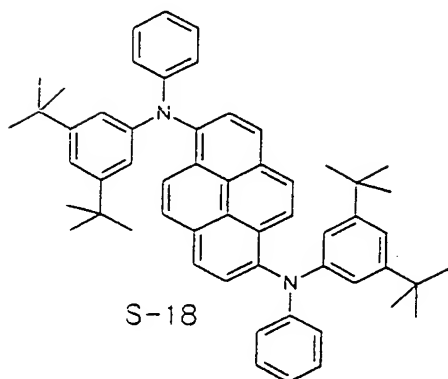
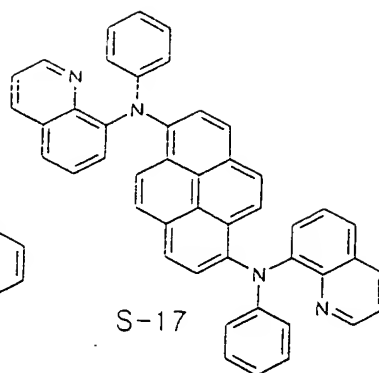
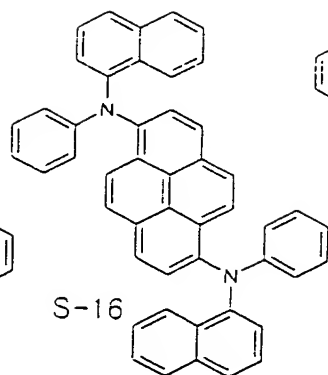
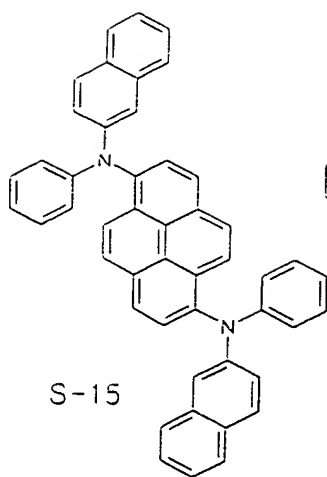
【청구항 11】

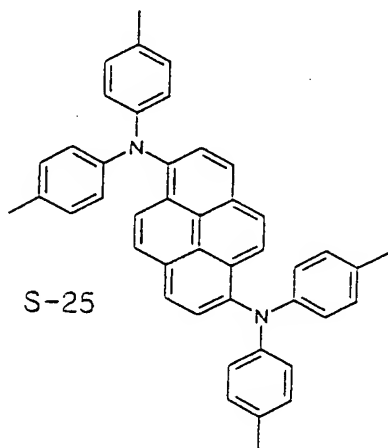
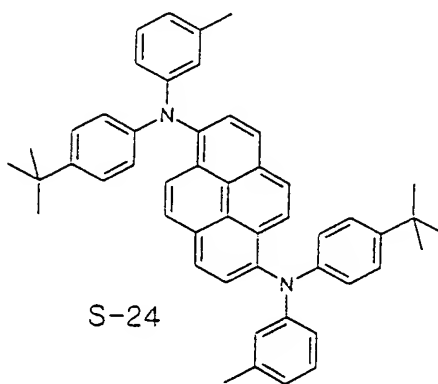
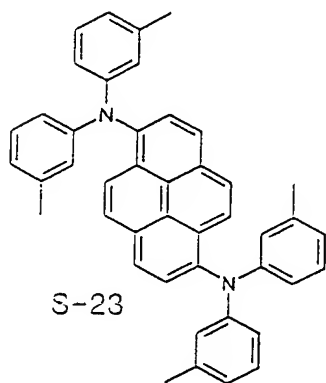
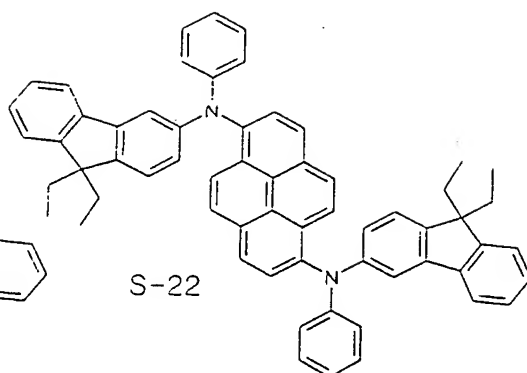
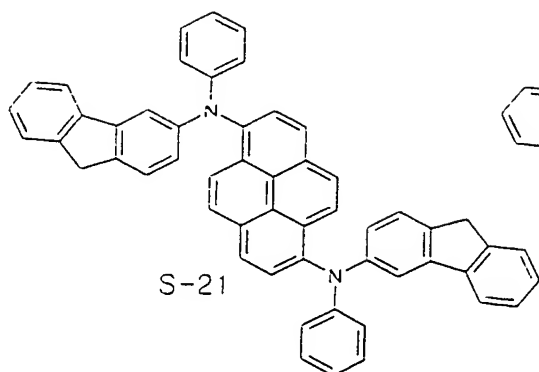
제 1 항에 있어서, 상기 청색 발광 물질이 다음의 화학식 4 중 어느 하나인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

[화학식 4]

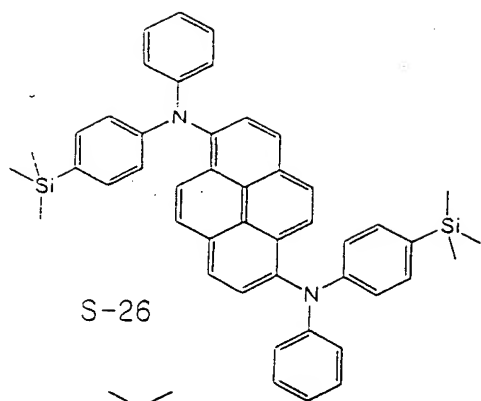




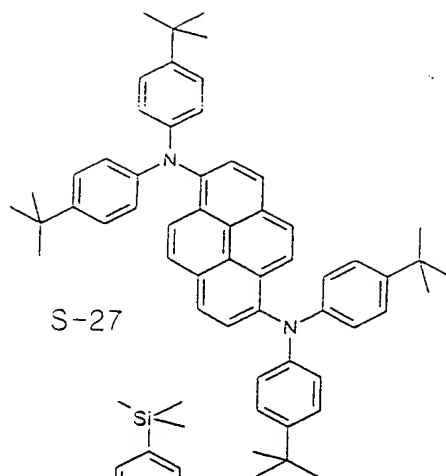




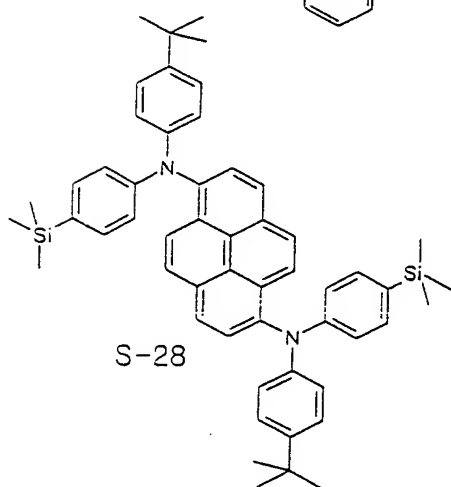




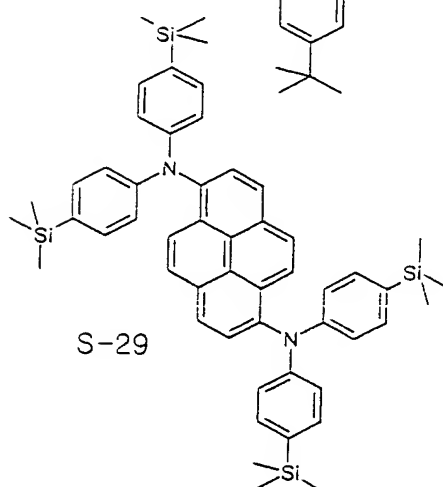
S-26



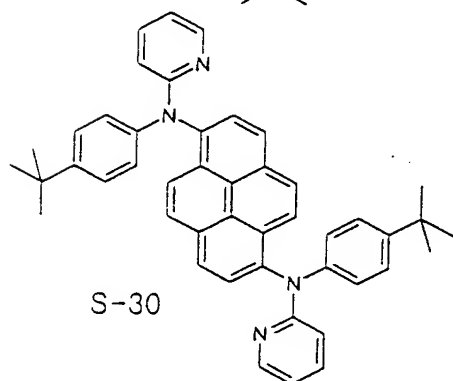
S-27



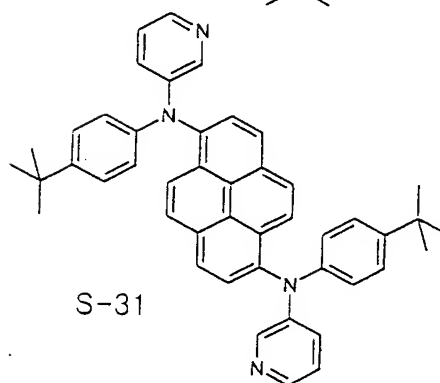
S-28



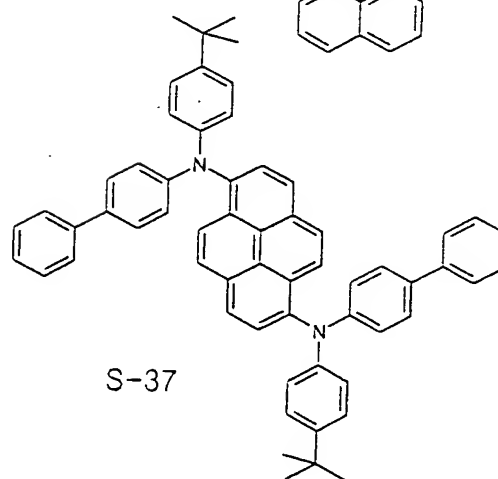
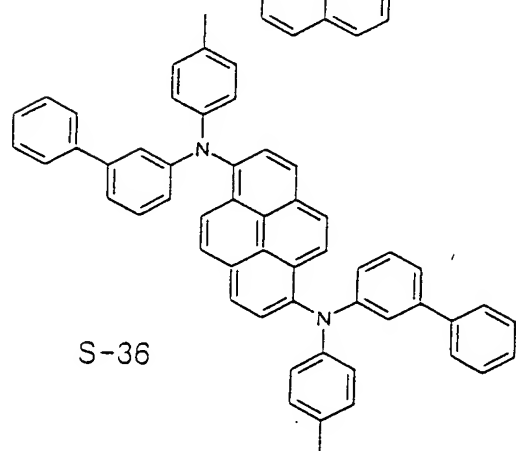
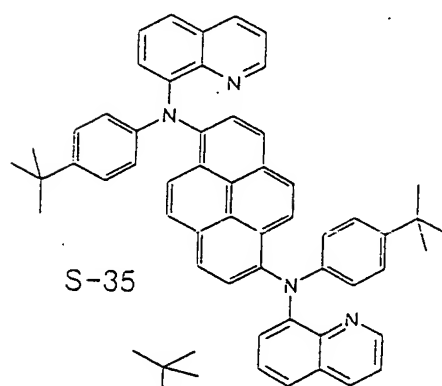
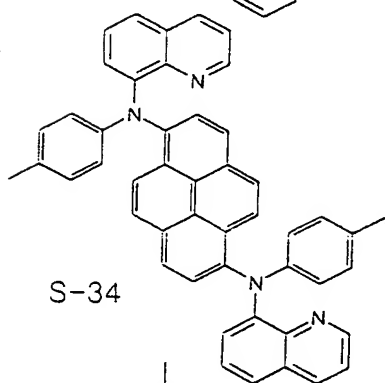
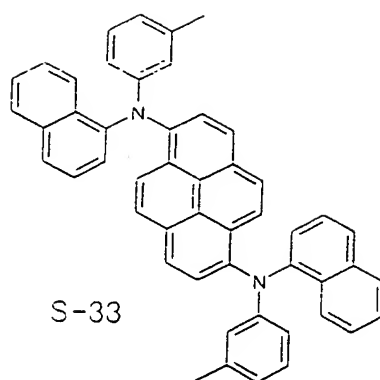
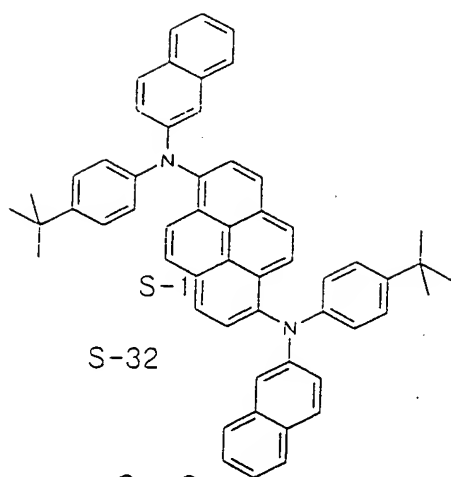
S-29

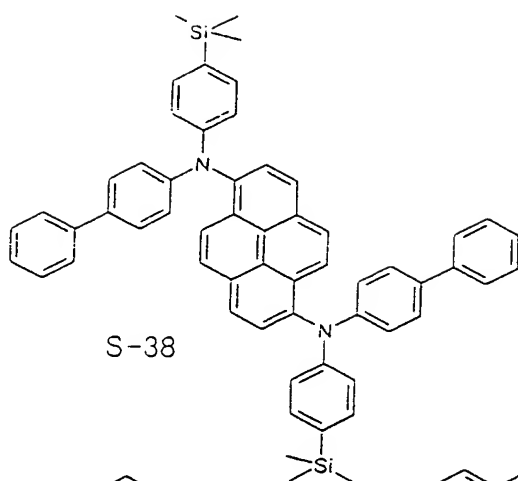


S-30

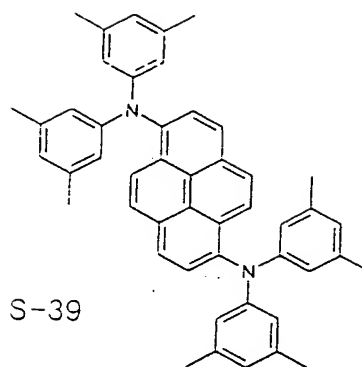


S-31

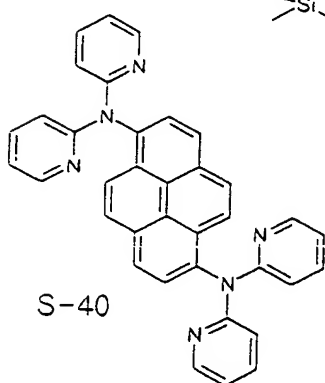




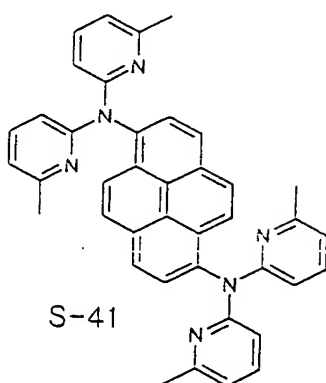
S-38



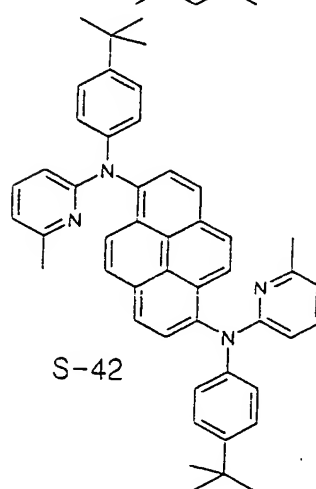
S-39



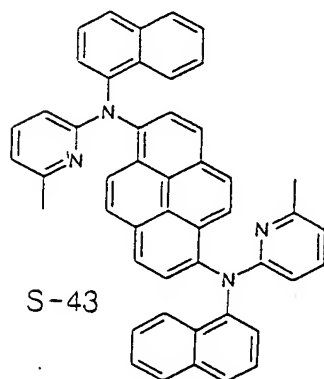
S-40



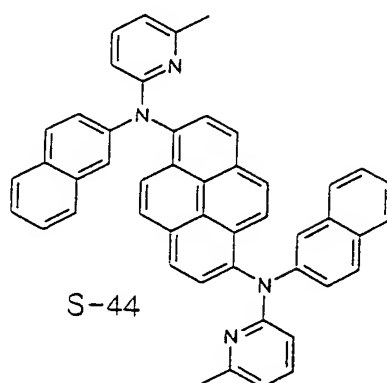
S-41



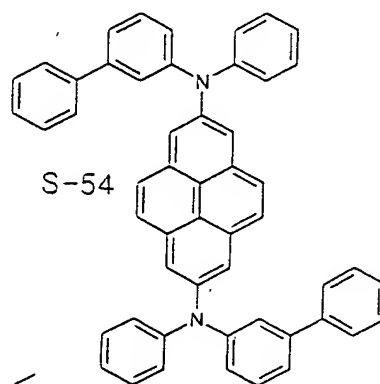
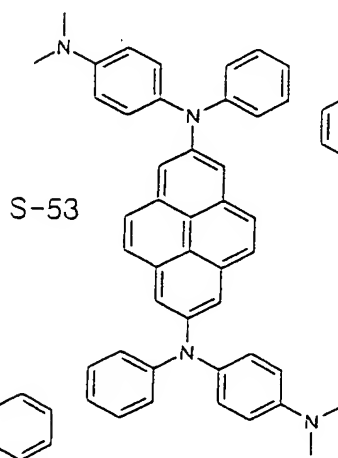
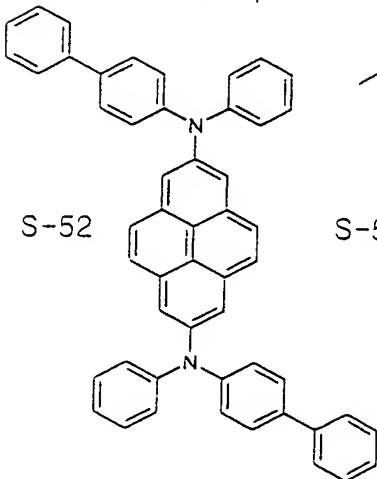
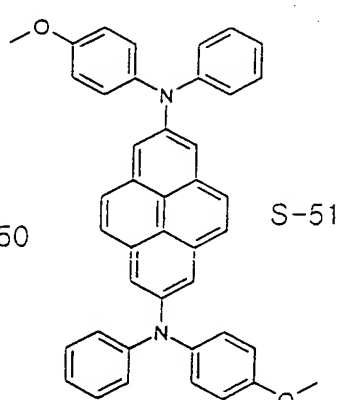
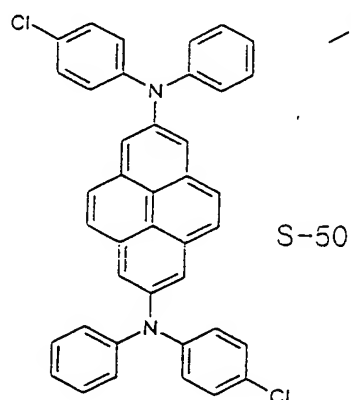
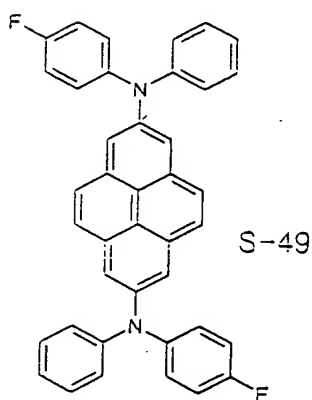
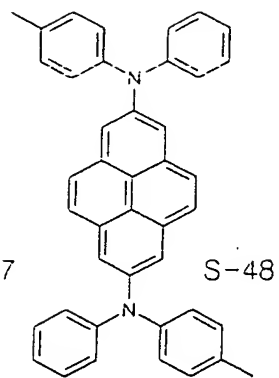
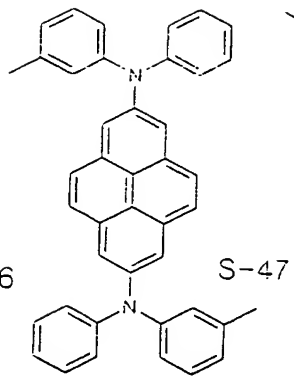
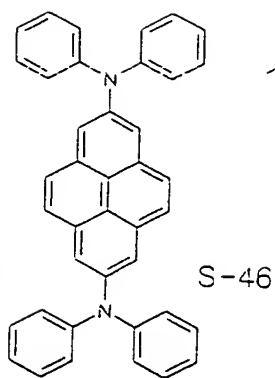
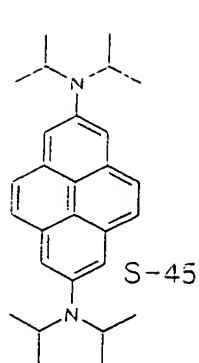
S-42

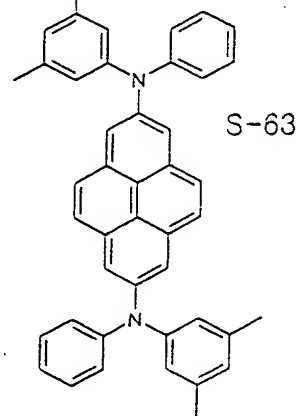
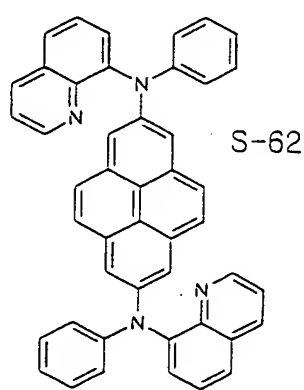
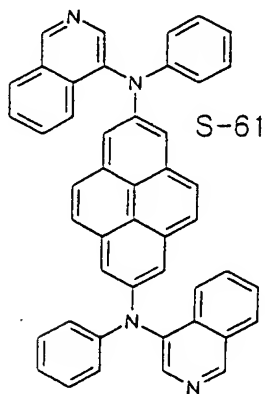
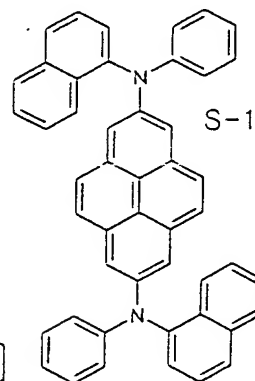
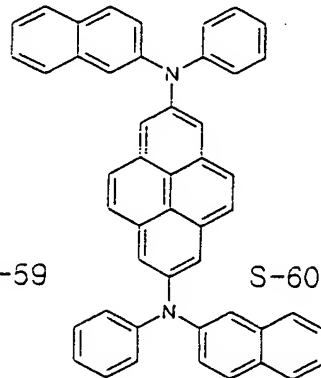
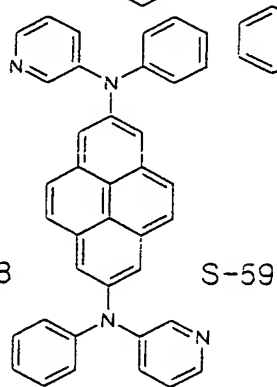
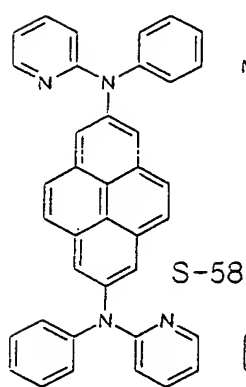
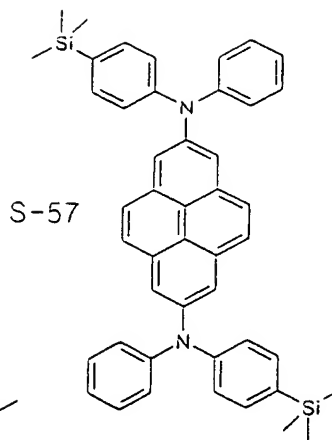
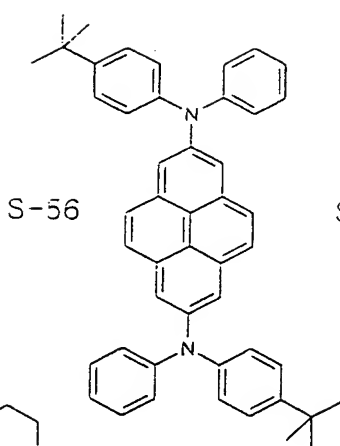
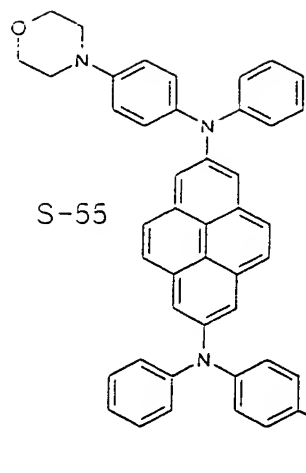


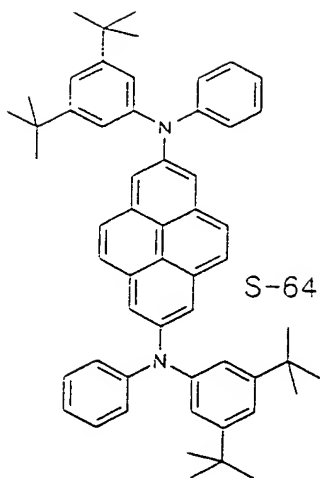
S-43



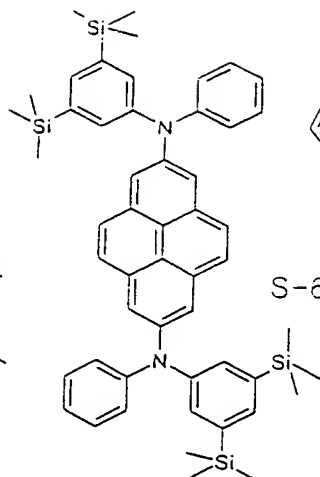
S-44



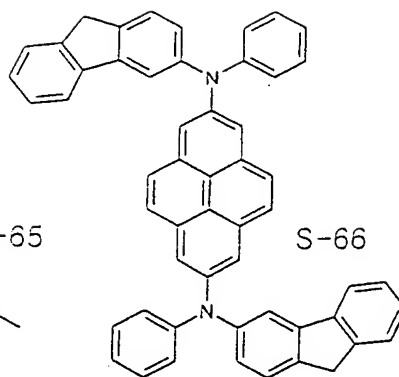




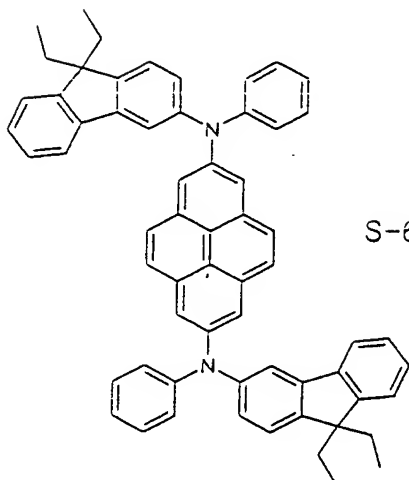
S-64



S-65



S-66



S-67

